

Femtosekunden Nahfeldspektroskopie an einzelnen Halbleiterquantenpunkten

D I S S E R T A T I O N

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium
(dr. rer. nat.)
im Fach Physik

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I
Humboldt-Universität zu Berlin

von
Herr Dipl.-Phys. Tobias Günther
geboren am 3.12.1971 in Albstadt

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:
Prof. Dr. Jürgen Mlynek

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:
Prof. Dr. Michael Linscheid

Gutachter:

1. Prof. Dr. T. Elsaesser
2. Prof. Dr. R. Zimmermann
3. Prof. Dr. U. Woggon

eingereicht am:	8. Januar 2003
Tag der mündlichen Prüfung:	22. Mai 2003

Kurzfassung

In dieser Arbeit werden erstmals die nichtlinearen optischen Eigenschaften einzelner Halbleiterquantenpunkte mit Femtosekunden-Zeitauflösung untersucht und dargestellt. Insbesondere die Besetzungs- und Polarisationsdynamik eines einzelnen Halbleiterquantenpunkts wird diskutiert.

Zur Durchführung der Experimente wird eine neuartige Messmethode entwickelt und eingesetzt: die Femtosekunden-Nahfeldspektroskopie. Die Kombination aus fs-Anrege-Abtast-Spektroskopie und optischer Nahfeldspektroskopie ermöglicht es, die nichtlinearen optischen Eigenschaften eines einzelnen Quantenpunkts mit hoher räumlicher, temporaler und spektraler Auflösung bei Temperaturen von 10 K bis 300 K zu untersuchen. Das zu diesem Zweck weiter entwickelte optische Nahfeldmikroskop bietet eine hohe räumliche Auflösung von bis zu 150 nm. Die Einführung einer neuartigen optischen Abstandsregelkontrolle sichert identische experimentelle Bedingungen über zahlreiche Stunden, ohne daß mechanische Wechselwirkungen zwischen den untersuchten Strukturen und dem apparativen Aufbau die Ergebnisse negativ beeinflussen.

Durch die Kombination dieses Nahfeldmikroskops mit einem klassischen fs-Anrege-Abtast-Aufbau können die nichtlineare optische Eigenschaften einzelner Quantenpunkte mit einer Zeitauflösung von bis zu 150 fs untersucht werden.

Zur Charakterisierung der Mehrfachquantenfilmprobe werden die linearen optischen Eigenschaften einzelner *Interface Quantenpunkte* mit Hilfe der stationären Methoden der Photolumineszenzspektroskopie und Photolumineszenz-Autokorrelationsspektroskopie untersucht und analysiert. Dadurch bietet sich die Möglichkeit der gezielten Untersuchung der räumlichen Statistik lokalisierter Zustände. Einblick in die räumliche Unordnung des zugrundeliegenden Potentialverlaufs kann gewonnen werden. In PL-Emission wird der Übergang von homogen verbreiterten Emissionslinien dicker Quantenfilme in ein inhomogen verbreitetes Emissionsspektrum bei gleichzeitiger Beobachtung spektral scharfer Emissionslinien einzelner lokalisierter Exzitonenresonanzen mit Abnahme der Filmdicke beobachtet. In PL-Autokorrelationsexperimenten wird ein zweites ausgeprägtes Korrelationsmaximum beobachtet. Dieses wird einem angeregten lokalisierten und optisch aktiven Zustand zugeschrieben. Die beobachtete Energiedifferenz zwischen Exzitonengrundzustand und dem beobachteten angeregten Zustand ermöglicht eine Abschätzung des Dipolmoment zu 40-50 D und der Ausdehnung von Quantenpunkte von ca. 50 nm.

Zeitaufgelöste Untersuchungen an *interface Quantenpunkten* werden mit einer spektralen Auflösung von 60 μeV in Reflexionsgeometrie durchgeführt. Diese gestatten zum einen die Bestimmung der Lebensdauer und Dipolmomente lokalisierter Exzitonenzustände. Zum anderen ist eine nahezu vollständige Rekonstruktion der Polarisationsdynamik nach optischer Anregung möglich.

Grossen Einfluss auf die spektrale Form der detektierten Reflektivitätsänderung besitzt die

Tiefe unter der ein Quantenpunkt unter der Oberfläche vergraben ist. Diese Tiefenabhängigkeit wird in dieser Arbeit genauer untersucht und analysiert.

Weiterhin wird erstmals die Polarisationsdynamik in einem einzelnen Quantenpunkt mit fs-Zeitauflösung untersucht und analysiert. Wird die durch den Abtastimpuls getriebene Polarisation nicht durch Wechselwirkung mit einem zweiten Impuls gestört, wird eine exponentielle zeitliche Abnahme der Polarisation mit der durch die homogenen Linienbreite bestimmten Dephasierungszeit ermittelt. Vielteilchenwechselwirkung nach nichtresonanter Anregung mit einem Anregeimpuls führt zur Änderung der Polarisationsdynamik lokalisierter Zustände und zur Beobachtung nichtverschwindender Reflektivitätsänderungen zu negativen Verzögerungszeiten. Als dominanter Mechanismus der in den zeitaufgelösten Experimenten vorherrschenden Vielteilchenwechselwirkung wird ein anregungsinduziertes Dephasieren nachgewiesen.

Schlagwörter:

Nahfeldspektroskopie, Quantenpunkt, Polarisation, Anrege-Abtast Spektroskopie

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Quantenpunktsysteme	5
3	Grundlagen der kohärenten Halbleiter-Nahfeldspektroskopie	10
3.1	Elektronische und optische Eigenschaften von Halbleiterquantenfilmen	10
3.1.1	Theoretische Beschreibung idealer Quantenfilme	11
3.1.2	Reale Quantenfilme: Einfluss der Unordnung auf optische und elektro- nische Eigenschaften	15
3.2	Nanooptik	22
3.2.1	Beugungsbegrenzung	22
3.2.2	Überwindung der Beugungsbegrenzung - Nahfeldmikroskopie	22
3.2.3	Einsatz von Nahfeldsonden an Halbleiterproben	26
3.3	Femtosekunden - Nahfeld - Anrege - Abtast - Spektroskopie	31
3.4	Reflexionseigenschaften inhomogener Halbleiterstrukturen	32
3.4.1	Reflexion und Transmission an einer idealen Grenzfläche	34
3.4.2	Reflexionsspektrum eines idealen Quantenfilms	35
3.4.3	Reflexionseigenschaften eines einzelnen Quantenpunktes	39
3.5	Kohärente Wechselwirkung von Licht mit Halbleiterquantenpunkten	44
3.5.1	Optische Blochgleichungen	45
3.5.2	Wechselwirkungen mit der Umgebung (Halbleiter Blochgleichungen) .	48
3.6	Wechselwirkung des Anregeimpuls - Auswirkung auf Dynamik und das detek- tierte Spektrum	52
3.7	Spektral integrierte und aufgelöste Detektion	56
4	Experimentelle Durchführung	59
4.1	Die Mehrfachquantenfilmstruktur	59
4.2	Das Nahfeldmikroskop	61
4.2.1	Die Nahfeldsonden	61
4.2.2	Abstandsregelkontrolle	64
4.2.3	Das Nahfeldmikroskop für variable Temperaturen	70
4.3	Die fs-Lichtquelle	72
4.3.1	Der Ti:Saphir-Oszillator	72
4.3.2	Bestimmung der Impulscharakteristik	74
4.3.3	Impulskompression	74
4.4	Experimenteller Aufbau	78

4.4.1	Nachweisempfindlichkeit	80
4.4.2	Bestimmung des Zeitnullpunktes:	83
5	Charakterisierung der Mehrfachquantenfilmprobe - PL- und Autokorrelationsspektroskopie	84
5.1	Lineare optische Eigenschaften der MQW-Probe — PL - Emissionsspektroskopie	84
5.2	Statistische Eigenschaften - Autokorrelationsspektroskopie	92
5.3	Diskussion	93
5.4	Zusammenfassung	99
6	Femtosekunden-Spektroskopie an einzelnen Halbleiterquantenpunkten	100
6.1	Femtosekunden-Nahfeld-Anrege-Abtast-Spektroskopie - Übertragung der Ergebnisse linear optischer Spektroskopie	100
6.2	Experimentelle Ergebnisse	102
6.2.1	Nichtlineares optisches Spektrum des Quantenfilms D	102
6.2.2	Zeitaufgelöste Reflektivitätsänderung eines einzelnen Quantenpunktes	107
6.2.3	Spektrum der Reflektivitätsänderung	108
6.2.4	Spektral integrierte Reflektivitätsänderung - Besetzungsdynamik . . .	110
6.2.5	Detektion der Kontinuumsreflektivitätsänderung - Bestimmung der Zeitauflösung	111
6.3	Signalentstehung	113
6.3.1	$\Delta t > 0$: Rekonstruktion der Polarisationsdynamik	113
6.3.2	Phasenfaktor	115
6.3.3	$\Delta t < 0$: Rekonstruktion der Polarisationsdynamik	118
6.3.4	Ursachen der Polarisationsdynamik für $\Delta t < 0$	119
6.3.5	Vergleich mit dem Experiment - Bestimmung der Zeitkonstanten . . .	128
6.3.6	Polarisationsdynamik	130
6.3.7	Anregungsinduziertes Dephasieren - Halbleiter - Blochgleichungen . .	131
6.4	Ladungsträgerdynamik	132
6.4.1	Ladungsträgertransport	133
6.4.2	Ladungsträgerrelaxation	136
6.4.3	Einfluss der Überschussenergie	138
6.5	Statistische Eigenschaften des 5.1 nm dicken Quantenfilms	140
6.5.1	Statistische Verteilung der Lebensdauern und Dipolmomente	140
6.5.2	Ausdehnung der Quantenpunkte	142
6.5.3	Detektierte Reflektivitätsänderung	144
6.5.4	Maximale Reflektivitätsänderung	145
6.6	Korrelierte hochenergetische Zustände - positive Reflektivitätsänderungen . .	146
6.7	Zusammenfassung	150
7	Schlussfolgerungen und Ausblick	153
7.1	Schlussfolgerungen	153
7.2	Ausblick	154

8	Anhang	177
8.1	Abkürzungen	177
8.2	wichtige physikalische Größen	179

Kapitel 1

Einleitung

Die Eigenschaften dimensionsreduzierter Halbleitersysteme sind sowohl für die physikalische Grundlagenforschung als auch für die technologische Anwendung von sehr grossem Interesse. Die Systeme ermöglichen die Untersuchung der Physik in kleinen Dimensionen. Sie zeigen überraschende optische und elektronische Eigenschaften. Gleichzeitig bieten sie eine Vielzahl an neuartigen technologischen Einsatzmöglichkeiten wie z. B. in Halbleiterlaser und Hochgeschwindigkeitstransistoren.

Die Reduzierung der Dimension führt dabei zur Einschränkung der Bewegungsfreiheit der Ladungsträger. Diskrete Eigenzustände mit diskreten Eigenenergien bilden sich aus. Dispersive Bänder in Halbleitern gehen in scharfe Energieniveaus mit einer modifizierten Zustandsdichte über. Dies führt zur Unterdrückung von Streuprozessen, folglich zu schärferen optischen Übergängen, sowie zu geringeren Schwellströmen im Laserbetrieb. Aus diesem Grunde fokussierten zahlreiche Untersuchungen auf die Bestimmung der optischen und elektronischen Eigenschaften dieser niederdimensionalen Halbleiterstrukturen (vgl. z.B. [Sha92]).

In Zweidimensionalen Halbleitersystemen, sogenannten Quantenfilmen existiert die Quantisierung nur in einer Raumrichtung. Subbänder mit diskreten Nullpunktsenergien E_i entstehen. Die 2D-Zustandsdichte ist nicht mehr wurzelförmig (3D) sondern stufenförmig ($\rho_{QW} \propto \sum_i \Theta(E - E_i)$). Signifikante Änderungen der optischen Eigenschaften wie z. B. des Absorptionsspektrums werden beobachtet (vgl. [Hau98, Sha92]). Die weitere Reduktion von 2-D auf 1-D Strukturen, sogenannten Quantendrähten, ändert die Energiestruktur sowie die Zustandsdichte $\rho_{QWR}(E)$ nochmals ($\rho_{QWR}(E) \propto \sum_i \Theta(E_i) / \sqrt{(E - E_i)}$).

Nulldimensionale Halbleitersysteme, sogenannte Quantenpunkte, sind aus 10^3 bis 10^6 Atomen bestehende Nanokristallite, deren geometrische Abmessungen in allen drei Raumrichtungen geringer als die de Broglie Wellenlänge eines Ladungsträgers sind. Ihre geringen geometrischen Abmessungen im Nanometerbereich führen zu einem nahezu vollständigen, dreidimensionalen Einschluss der elektronischen Wellenfunktionen und einer vollständigen 3D-Quantisierung der Energiezustände. Die stationären optischen Eigenschaften von Quantenpunkten ähneln denen von atomaren Systemen. Quantenpunkte stellen daher Modellsysteme für die Physik „künstlicher“ Makroatome in Festkörpern dar. Zudem bieten die gegenüber Quantenfilmen veränderten optoelektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten die Möglichkeit zur Realisierung von Halbleiterlasern mit geringen Schwellströmen, hohen Modulationsbandbreiten, hoher Temperaturstabilität und gegenüber Quantenfilmen erweitertem Wellenlängenbereich [Ara82, Gru97].

Dieses hat in den letzten Jahren zu einer Erforschung unterschiedlicher Herstellungsverfahren für Quantenpunkte, speziell des selbstorganisierten Stranski-Krastanov Wachstums in verspannten Halbleiterschichten, geführt (z. B. [Mo90, Guh90, Car94, Nöt94]). Im gleichen Zeitraum wurden die stationären optischen Eigenschaften von Quantenpunkten intensiv untersucht. Da sich mit den bisher bekannten Verfahren nur Ensembles aus Quantenpunkten mit ausgeprägten Grössen- und/oder Zusammensetzungsschwankungen herstellen lassen, weisen die optischen Spektren solcher Ensembles eine ausgeprägte inhomogene Verbreiterung auf [Bim99]. Räumlich aufgelöste spektroskopische Untersuchungen an einzelnen Quantenpunkten sind daher von besonderer Bedeutung für das Verständnis ihrer optischen Eigenschaften. Photolumineszenz - Spektren einzelner Quantenpunkte zeigen schmalbandige Emissionslinien mit einer spektralen Breite von wenigen μeV , die der Emission von einzelnen Exzitonen zugeordnet werden [Bru92, Hes94, Gam95b, Gam96a, Bay02]. Die schmalen Emissionslinien deuten auf lange Dephasierungszeiten von einigen 10 - 100 ps hin. Die Photolumineszenz-Anregungsspektren ähneln in gewisser Hinsicht denen atomarer Systeme. Neben der Beobachtung schmalbandiger Absorptionsresonanzen, die angeregten exzitonischen Zuständen zugeordnet werden können [Gam95b, Gam96a], ist es in einigen Fällen möglich, den unterschiedlichen Exzitonenzuständen Schalen zuzuordnen, deren charakteristische Struktur ähnlich der von Atomen ist [Haw00]. Im Unterschied zu Atomen ist jedoch die Kopplung an das Lichtfeld für Halbleiterquantenpunkte deutlich erhöht. Die relativ große räumliche Ausdehnung der elektronischen Wellenfunktionen von etwa 10-50 nm führt zu Dipolmomenten von etwa 10 - 100 Debye (D) [And99, Gue02, Sti02a]. Dies ist etwa eine Grössenordnung oberhalb der von atomaren Systemen.

Die für elektronische Anregungen in Halbleiter-Nanostrukturen recht langen Dephasierungszeiten und die starke Kopplung an Lichtfelder führten in den letzten Jahren zu verschiedenen Vorschlägen, exzitonische Anregungen von einzelnen Quantenpunkten als Grundbausteine - sogenannten Q-Bits - für eine halbleiter-basierende Quanteninformationsverarbeitung zu nutzen. Diese Quanteninformationsverarbeitung beruht auf der gezielten Manipulation und Kopplung kohärenter Polarisationen einzelner Quantenzustände, den Q-Bits. Biolatti et al. unterbreiteten den Vorschlag, exzitonische Anregungen einzelner Quantenpunkte als Q-Bits zu verwenden und benachbarte Quantenpunkte über Dipol-Dipol-Wechselwirkung miteinander zu verkoppeln [Bio00]. Dabei gingen die Autoren davon aus, dass unter Einsatz geeigneter experimenteller Parameter quantenlogische Operationen auf einer Zeitskala von etwa 1 ps durchgeführt werden können. Bei Dephasierungszeiten von etwa 1 ns ließen sich damit ca. 1000 Rechenoperationen durchführen bevor die Kohärenz des quantenmechanischen Systems durch Wechselwirkung mit der Umgebung zerstört wird.

An die experimentelle Realisierung einer auf exzitonischen Anregungen von Quantenpunkten basierenden Quanteninformationsverarbeitung im Festkörper ergeben sich damit folgende Voraussetzungen:

- (i) Kohärente Polarisationen einzelner Quantenpunkte müssen auf sub - Pikosekundenzeitskalen erzeugt und ausgelesen werden können.
- (ii) Die Kohärenz dieser Polarisationen muss auch bei Wechselwirkung mit externen Lichtfeldern und mit Anregungen in der Umgebung der Quantenpunkte (Phononen, Ladungsanregungen, Strahlungsfelder, etc.) auf einer Pikosekunden-Zeitskala erhalten bleiben.
- (iii) Eine hinreichende kohärente Kopplung der Polarisationen benachbarter Quantenpunkte ist notwendig.

Bislang wurde das Auslesen kohärenter Polarisationen einzelner Quantenpunkte

mit Femtosekunden-Zeitauflösung experimentell noch nicht demonstriert werden. Die Physik der Dekohärenz exzitonischer Polarisierung in Quantenpunkten und speziell der kohärenten Kopplung benachbarter Quantenpunkte ist im Detail unverstanden.

An einem experimentellen Nachweis quantenlogischer Operationen in gekoppelten Halbleiter-Quantenpunkten wird gegenwärtig in einer Reihe von Forschungslaboratorien intensiv gearbeitet.

In dieser Arbeit soll ein wesentlicher Teilaspekt diskutiert und experimentell demonstriert werden: die Erzeugung und Detektion kohärenter Polarisierungen einzelner Quantenpunkte mit Femtosekundenzeitauflösung. Hierfür wird in dieser Arbeit eine neue Technik vorgestellt: die Femtosekunden-Nahfeldspektroskopie. Diese Technologie bietet die Möglichkeit, nichtlineare optische Einzelpunktspektroskopie mit Femtosekunden-Zeitauflösung in Reflexionsgeometrie durchzuführen. Sie zeichnet sich weiterhin durch höchste Detektionsempfindlichkeit nahezu am theoretischen Limit des Schrot-Rauschens aus. Zusätzlich dazu ist ein Abrastern der Probe möglich.

Zur Realisierung dieser Technik werden Femtosekunden-Lichtimpulse in einer unbedampften Nahfeldsonde räumlich lokalisiert. Das transmittierte Licht wechselwirkt mit der Halbleiterprobe. Der von der Probe reflektierte Anteil wird mit der gleichen Nahfeldsonde aufgesammelt, spektral zerlegt und mittels einer CCD-Kamera nachgewiesen. Diese Technik ermöglicht es, nichtlineare optische Experimente mit einer Zeitauflösung von 100 fs und einer räumlich-optischen Auflösung von etwa einem Fünftel der Lichtwellenlänge durchzuführen. Gleichzeitig zeichnet sich diese Technik durch die hohen Transmissions- und Kollektionseffizienzen der verwendeten unbedampften Nahfeldsonden und durch eine hohe Nachweisempfindlichkeit aus, mit der es erstmals gelingt, transiente optische Nichtlinearitäten einzelner optischer Quantenpunkte mit einer Zeitauflösung im Femtosekundenbereich nachzuweisen. Die durchgeführten Experimente werden in dieser Arbeit im Detail diskutiert. Die Signalentstehung wird im Detail analysiert und es wird experimentell demonstriert, dass in diesen Experimenten die Dynamik der kohärenten Polarisierung eines einzelnen Quantenpunkts direkt beobachtet wird. Es wird gezeigt, dass die Dynamik der exzitonischen Quantenpunktpolarisierung äußerst sensitiv auf Vielteilchen-Wechselwirkungen mit Nichtgleichgewichts-Ladungsträgeranregungen in der Umgebung des Quantenpunktes ist. In den durchgeführten Experimenten führt die Coulomb-Wechselwirkung mit Nichtgleichgewichts-Ladungsträgeranregungen zu einer Dephasierung der kohärenten Quantenpunktpolarisierung auf einer Zeitskala von wenigen Pikoskunden. Unter den gewählten experimentellen Bedingungen ist diese anregungsinduzierte Dephasierung der dominante Beitrag zur transienten optischen Nichtlinearität einzelner Quantenpunkte. Damit zeigen diese Experimente, dass obwohl die stationären optischen Spektren an Halbleiter-Quantenpunkten auf isolierte Zweiniveausysteme deuten, Kopplungen zwischen elektronischen Zuständen eine bedeutende Rolle zukommt.

Im Vorfeld dieser Experimente wurden im Rahmen dieser Dissertation eine Reihe von Vorarbeiten durchgeführt, die in dieser Arbeit nicht im Detail besprochen werden sollen. Die experimentellen Ergebnisse sind bereits publiziert worden und sollen hier kurz zusammengefasst werden.

- Die optische Nichtlinearität einzelner (311)A Quantendrähte wurde mittels Femtosekunden-Nahfeldspektroskopie bei Raumtemperatur untersucht. Die Experimente zeigen eine ultraschnelle Ladungsträgerrelaxation in den Quantendraht auf einer

Zeitskala von 100 Femtosekunden [Gue99].

- Die Dynamik des optischen Transports von Nichtgleichgewichtsladungsträgern entlang einzelner Quantendrähte wurde in Nahfeld - Anrege - Abtastexperimenten mit Femtosekunden Zeitauflösung bei Raumtemperatur untersucht. Die Experimente zeigen eine Erhöhung der elektronischen Nichtgleichgewichtsmobilität innerhalb des Quantendrahtes gegenüber der Mobilität in Quantenfilmen. Dieses wird darauf zurückgeführt, dass bei Raumtemperatur das quasi-eindimensionale Quantendraht-Einschlusspotential zu einer räumlichen Ladungstrennung führt [Emi00, Emi01a].

In dieser Dissertation wird die experimentelle Untersuchung der transienten optischen Nichtlinearität einzelner *Interface-Quantenpunkte* beschrieben. Die Arbeit gliedert sich wie folgt: In **Kap.2** erfolgt eine kurze Beschreibung der optischen und elektronischen Eigenschaften von InGaAs- sowie *Interface Quantenpunkten*.

In **Kap. 3** werden die notwendigen theoretischen Grundlagen dargestellt, die für das Verständnis der Experimente erforderlich sind. Neben der Beschreibung der elektronischen und optischen Eigenschaften ungeordneter Quantenfilme werden die für die Experimente wichtigen Eigenschaften der Nahfeldspektroskopie diskutiert. Die theoretische Beschreibung der kohärenten Dynamik elektronischer Anregungen in ungeordneten Quantenfilmen und deren Wechselwirkung mit ultrakurzen Lichtimpulsen wird skizziert.

In **Kap. 4** wird neben einer kurzen Darstellung der untersuchten Proben, der experimentelle Aufbau des Tieftemperatur-Nahfeldmikroskop und das Femtosekunden-Anrege-Abtast-Spektrometer dargestellt. Besondere Beachtung findet die notwendige Impulskompression und eine neue, in dieser Arbeit eingesetzte, rein optische Abstandsregelung.

In **Kap.5** werden die stationären optischen Eigenschaften der Mehrfachquantenfilmstruktur diskutiert. Es wird gezeigt, dass die Technik der Photolumineszenz - Autokorrelationsspektroskopie Informationen über die Ausdehnung der exzitonischen Wellenfunktionen liefert.

In **Kap.6** werden die Ergebnisse von fs-Experimenten an der Mehrfachquantenfilmprobe dargestellt. Lebensdauern und Dipolmoment exzitonischer Anregungen in Quantenfilmen werden experimentell bestimmt. Die transiente optische Nichtlinearität wird spektral und zeitaufgelöst analysiert und es wird gezeigt, und der Einfluss von Vielteilchen-Wechselwirkungen auf die Dynamik der kohärenten exzitonischer Polarisierungen eines einzelnen Quantenpunkts wird diskutiert. Schließlich werden die Ergebnisse der Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick auf weitere Arbeiten gegeben.

Kapitel 2

Quantenpunktsysteme

Nulldimensionale Halbleitersysteme, sogenannte Quantenpunkte, zeichnen sich durch ein in allen drei Raumrichtungen vermindertes Potential aus. Sie besitzen Ausdehnungen von maximal wenigen 10 nm in jeder Dimension. Die Bewegungsfreiheit der Ladungsträger ist in allen drei Dimensionen reduziert. Es bilden sich quantisierte Eigenzustände mit diskreten Eigenenergien aus. Dies geht einher mit teilweise oder vollständig in einzelnen Quantenpunkten lokalisierten Eigenwellenfunktionen.

Diese wegen der dreidimensionalen Potentialverminderung auf der Längenskala der de Broglie-Wellenlänge bestehende Quantisierung führt zu fundamentalen Änderungen der optischen und elektronischen Eigenschaften im Vergleich zu höherdimensionalen Halbleitersystemen. Gleichzeitig führt dies zu einer fundamentalen Änderung der Zustandsdichte $\rho_{QD}(E)$. $\rho_{QD}(E)$ zeigt idealerweise Delta-förmige Resonanzen $\rho(E) = \sum_n \delta(E - E_n)$. Streuprozesse werden sehr stark unterdrückt. Spektral scharfe optische Übergänge sind zu erwarten. Daher gelten Halbleiterquantenpunkte als Modellsysteme für Makroatome in dielektrischer Festkörperumgebung.

Diese für Halbleiternanostrukturen ausgezeichneten optischen und elektronischen Eigenschaften eröffnen zahlreiche neue Möglichkeiten für zukünftige technologische Anwendungen. So werden beispielsweise Einelektronentransistoren auf Quantenpunktbasis diskutiert. Ebenfalls grosse Bedeutung wird der Entwicklung von Quantenpunktlasern mit niedrigen Schwellströmen, hohen Modulationsbandbreiten, hoher Temperaturstabilität und gegenüber Quantenfilmen erweitertem Wellenlängenbereich zugemessen [Ara82, Gru97]. Schliesslich liegt in den letzten Jahren ein besonderes Augenmerk auf Quantenpunkte als fundamentale Bausteine einer halbleiter-basierenden Quantenlogik [Bio00, Tro00].

Derzeit werden eine Vielzahl von Modellsystemen für Halbleiter-Quantenpunkte experimentell und theoretisch untersucht. Im folgenden sollen kurz die bisher ermittelten wesentlichen optischen und elektronischen Eigenschaften von zwei für diese Arbeit relevanten Systeme zusammengefasst werden: selbstorganisierte Quantenpunkte auf $In_xGa_{1-x}As$ -Basis und *Interface Quantenpunkte* in ungeordneten GaAs-Quantenfilmen.

InGaAs-Quantenpunkte

Wird eine wenige Monolagen dicke Schicht aus $In_xGa_{1-x}As$ auf einem GaAs Substrat abgeschieden, so bilden sich als Folge der Gitterfehlanpassung der beiden Schichten spontan neben einer dünnen Deckschicht (Wetting-Layer) dreidimensionale Inseln aus $In_xGa_{1-x}As$ aus deren Abmessungen im Nanometer-Bereich sind (z. B. [Ram97, Ebi99]).

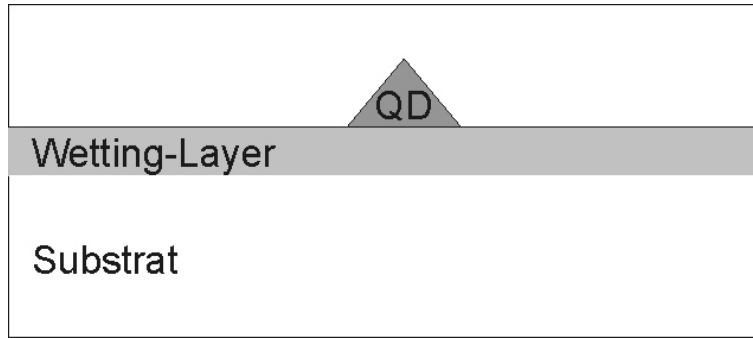


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines selbstorganisierten Quantenpunkts. Während des Wachstums bilden sich neben der Wetting-Layer durch Selbstorganisation einzelne Quantenpunkte aus.

Diese Wachstumsform bezeichnet man als Stranski-Krastanov-Wachstum [Str37] (vgl. Abb. 2.1). Aus den geringen lateralen Abmessungen dieser Inseln von wenigen 10 nm (z. B. [Ram97, Ebi99]) und dem grossen Unterschied der Bandlücken $In_xGa_{1-x}As$ und GaAs resultiert ein dreidimensionaler Einschluss der Elektron- und Loch- Wellenfunktionen mit recht grossen Einschlusspotentialen von mehreren 10-100 meV [Bim99].

Die linearen optischen Eigenschaften einzelner InGaAs-Quantenpunkte wurden in den letzten 5 Jahren mittels Photolumineszenz-emissions- (PL) und Photolumineszenzanregungsspektroskopie (PLE) intensiv untersucht [Haw00, Bay02]. Einzelpunkt-PL Spektren zeigen schmalbandige Emissionslinien, die der exzitonischen Grundzustandsemission der Quantenpunkte zugeordnet werden können. Bei tiefen Temperaturen, $T=2$ K, werden in solchen Experimenten homogen verbreiterte Emissionslinien mit Linienbreiten bis unterhalb $2 \mu\text{eV}$ gefunden. Diesen extrem schmalen Linienbreiten entsprechen Dephasierungszeiten von bis zu 700 ps, die auch in der Tat vor kurzem in Vierwellen-Misch-Experimenten an inhomogen verbreiterten Ensembles von Quantenpunkten experimentell nachgewiesen worden sind [Bor01, Bir01]. Die Linienbreite nimmt bei Temperaturen von bis zu 60 K linear mit der Temperatur zu ($\gamma(T) \simeq \gamma_0 + \gamma_{ak}T$). Dabei beschreibt $\gamma_0 = 1/T_{rad}$ die strahlende Quantenpunkt-Lebensdauer von ca. 1 ns. Die Zunahme der Linienbreite wird durch die Wechselwirkung mit akustischen Phononen hervorgerufen. Experimentell ergeben sich Wechselwirkungsstärken von $\gamma_{ak} = 0.12\text{--}2.1 \mu\text{eV/K}$ [Bay02, Kam02].

Der strahlenden Lebensdauer von etwa 1 ns entspricht ein Dipolmoment von ca. 10 D. Die Linienbreiten legen ein Dipolmoment von ungefähr 20 D nahe. Dieser Wert des Dipolmoments wurde inzwischen in einer Reihe von Experimenten bestätigt (z. B. [Bor01, Eli00]). PLE-Experimente bieten Einblick in die Absorptionseigenschaften von InGaAs-Quantenpunkten. Einzel-Quantenpunkt PLE-Spektren weisen schmalbandige Absorptionsresonanzen auf, die angeregten exzitonischen Zuständen zugeordnet werden können. In manchen Proben kann diesen angeregten Exzitonenzuständen eine Schalenstruktur (s-,p-,d-) ähnlich der von Atomen zugewiesen werden [Haw00]. Daneben weisen solche Spektren oft einen im Detail unverstandenen Untergrund auf, welcher der Kopplung der Quantenpunkt-zustände an Kontinuumszustände der umgebenden Wetting-Layer zugeschrieben wird. Zudem werden Raman-artige Resonanzen beobachtet [Tod00], die von der Wechselwirkung von Exzitonen mit optischen Phononen herrühren.

Der Einfluss der Exziton-LO-Phonon-Wechselwirkung in diesen Quantenpunkten ist ein

Gegenstand aktueller Forschung und bislang im Detail unverstanden. Störungstheoretische Beschreibungen lassen in diesen Quantenpunkten aufgrund der Energiequantisierung der elektronischen Zustände nur eine geringe Wechselwirkung mit optischen Phononen erwarten, was zu einer Vielzahl von Voraussagen über eine starke Unterdrückung der phonon-induzierten Exziton-Relaxation in Quantenpunkten geführt hat (Phonon-Bottleneck) [Boc90]. Im Widerspruch zu diesen Vorhersagen werden jedoch zumeist recht kurze Relaxationszeiten von etwa 10 ps für angeregte Zustände beobachtet [Ham99, Ver00, Ver01, Ver02a, Ver02b], obwohl die Energiedifferenz deutlich von der LO-Phononenergie abweicht [Hei97, Ohn96]. Es wird gegenwärtig vermutet, dass diese schnelle Relaxation eine Folge der starken Exziton-LO-Phonon-Kopplung ist. Diese starke Kopplung führt dazu, dass eine störungstheoretische Beschreibung des Exzitonensystems nicht hinreichend ist, und dass das gekoppelte Exziton-Phononsystem als exzitonisches Polaron betrachtet werden muss [Ham99]. Der anharmonische Zerfall des LO-Phonons [Val91] führt dann zu einer effektiven Energierelaxation und zur Überwindung des Phononbottlenecks [Ver02a].

Rabi-Oszillationen in InGaAs Quantenpunkten konnten sowohl am exzitonischen Grundzustand [Zre02], an angeregten Exzitonenzuständen [Kam01] und - in Ansätzen - auch an Quantenpunktensembles in FWM-Experimenten [Bor02] beobachtet werden. Dabei ist jedoch die starke Dämpfung der Oszillationen für Impulsflächen von mehr als 2π derzeit noch ungeklärt. Die aus der Variation der Impulsfläche ermittelten Dipolmomente betrugen ungefähr 18 D für den Exzitonengrundzustand [Bor02] und 40 D für den ersten angeregten Zustand [Kam01].

Bislang konnten noch keine nichtlinearen optischen Experimente an einzelnen InGaAs-Quantenpunkten durchgeführt werden.

Interface Quantenpunkte

Als zweites Modellsystem werden in der Literatur sogenannte *Interface Quantenpunkte* häufig diskutiert. *Interface Quantenpunkte* bilden sich während des Wachstums dünner Quantenfilme durch unvermeidliche Fluktuationen der Quantenfilmdicke und der Zusammensetzung des Quantenfilms beziehungsweise der umgebenden Pufferschichten. Inseln entstehen, deren laterale Ausdehnungen etwa 20 - 150 nm betragen (Abb. 2.2) [Gam95b, Gam96a]. Diese Fluktuationen der Quantenfilmdicke und -zusammensetzung führen zu lokalen Schwankungen der Bandlücke in der Quantenfilmebene, was wiederum zur Lokalisierung exzitonischer Wellenfunktionen in lokalen Minima des daraus resultierenden Unordnungspotentials führt. Diese lokalisierten Exzitonenzustände können als Zustände von lokalen Quantenpunkten betrachtet werden. Das Einschlusspotential dieser *Interface Quantenpunkte* liegt in der Größenordnung der Energiedifferenz zweier benachbarter Monolagen und beträgt somit im Gegensatz zu InGaAs-Quantenpunkten nur wenige meV.

In PL-Experimenten mit hoher räumlich-optischer und energetischer Auflösung werden scharfe homogen verbreiterte Emissionslinien detektiert, die lokalisierten Exzitonenzuständen zugeschrieben werden können [Hes94, Bru92, Gam96a, Zre02]. Die detektierten Emissionslinienbreiten sind in der Größenordnung von $30 \mu\text{eV}$ [Gue02, Che02]. Sie lassen auf Polarisationsdephasierungszeiten von über 30 ps schließen.

Über die direkte zeitaufgelöste Beobachtung der Dephasierungszeiten an einzelnen *Interface Quantenpunkten* wurde bislang nicht berichtet.

Der Einfluss der Exziton-Phononwechselwirkung auf die homogene Linienbreite einzelner

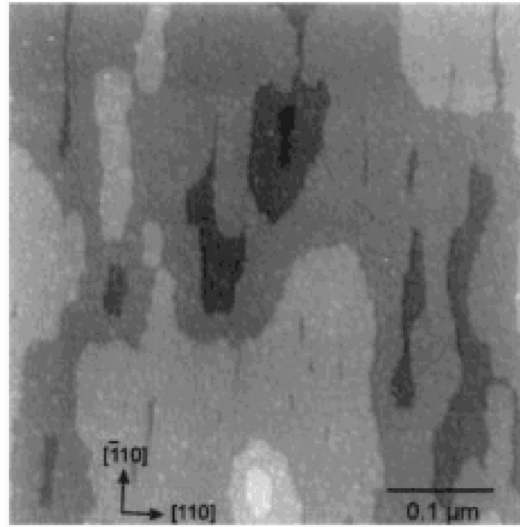


Abbildung 2.2: Rastertunnelmikroskop-Abbildung einer wohlgeordneten GaAs-Oberfläche nach dem Wachstum (aus [Gam96a]). Sie zeigt große Inseln mit einer Ausdehnung von 20 - 150 nm die durch das Auftreten von Monolagenstufen auf der ansonsten glatten Oberfläche entstehen. Diese Wachstumsinseln werden als *Interface Quantenpunkte* bezeichnet.

Quantenpunkte wurde ebenfalls untersucht [Gam96b, Zha02]. Dabei wird eine mit ansteigende Linienverbreiterung mit $\gamma_{ak} \approx 1.14 \mu\text{eV/K}$ beobachtet.

PLE-Experimente ergeben Aufschluss über die Ausdehnung lokalisierter Zustände, über mögliche angeregte Zustände sowie über deren Linienbreiten [Gam95b, Gam96a, Gam96b]. In solchen Experimenten an einzelnen Quantenpunkten werden mehrere angeregte Zustände beobachtet. Die bestimmte Energiedifferenz von 4.3 meV zwischen dem Exzitonengrundzustand und dem ersten angeregten Zustand eines *Interface Quantenpunkts* deutet auf eine räumliche Ausdehnung der Quantenpunkte von ca. $55 \times 75 \text{ nm}^2$ hin [Gam95b]. Die detektierten Linienbreiten von ungefähr 20–30 μeV stehen in guter Übereinstimmung mit den detektierten Linienbreiten aus PL- und nichtlinearen Transmissionsexperimenten [Gam96b].

Die Lebensdauern einzelner Exzitonenzustände wurde unter anderem mittels zeitaufgelöster PL-Emissionsspektroskopie temperaturabhängig untersucht [Boc97]. Bei 7 K wurden Lebensdauern von bis zu 250 ps gefunden. Eine Abnahme der Lebensdauer mit Zunahme der Proben temperatur wird beobachtet. Die Lebensdauern liegen in der Größenordnung der theoretischen Erwartungen, die für tiefe Temperaturen strahlende Lebensdauern von über 100 ps bestimmen [Cit93, Boc93, Tak99].

Die Populationsdynamik einzelner *Interface Quantenpunkte* wurde auch mittels nichtlinearer Transmissionsspektroskopie untersucht [Sti02b, Sti01]. Die betrachteten lokalisierten Zustände nahe des Absorptionsmaximums des Fernfeldabsorptionsspektrums weisen allerdings Lebensdauern von ungefähr 25–50 ps auf. Diese geringen Zerfallszeit wurde vorwiegend nichtstrahlenden Relaxationsprozessen zugeschrieben [Sti02b].

Ebenfalls in nichtlinearer Transmissionsspektroskopie wurden Biexzitonenzustände spektroskopiert [Che02, Sti02b]. Eine positive Biexzitonenzustandsenergie und eine um einen Faktor 2 reduzierte Lebensdauer konnte ermittelt werden.

Aufgrund ihrer Ausdehnung wird *Interface Quantenpunkten* ein Dipolmoment von 40–100 D zugeschrieben [And99]. Derartige Dipolmomente wurden in nichtlinearer Transmissionsspektroskopie experimentell beobachtet [Gue02, Sti02a]. Eine weitere experimentelle Verifikation gelang mit der Beobachtung von Rabi-Oszillationen [Sti01].

Aufgrund dieser großen Dipolmomente sind Absorptionskoeffizienten von *Interface Quantenpunkten* etwa 2-10 mal größer als diejenigen von InGaAs-Quantenpunkten. Gleichzeitig trägt dieses Dipolmoment zu den beobachteten größeren homogenen Linienbreiten bei.

Obwohl möglichst lange Dephasierungszeiten und schmale homogene Linienbreiten für die technologische Anwendung erwünscht sind - InGaAs-Quantenpunkte folglich ein größeres Potential zugeschrieben wird - besitzen für die Durchführung der nichtlinearen optischen Experimente in dieser Arbeit gerade *Interface Quantenpunkte* große Vorteile gegenüber InGaAs-Quantenpunkten. So führt das große Dipolmoment zu deutlich erhöhten Absorptionskoeffizienten und damit zu größeren Signalintensitäten, da $\alpha \propto |\mu|^2$ [Thr02, Gue02]. Ein weiterer Vorteil der ungeordneten Quantenfilmsysteme liegt in der größeren strahlenden Linienbreite. Sie ermöglicht eine effizientere Anpassung der Monochromatorauflösung an die Linienbreite, was wiederum zu einer Erhöhung der Signalintensität in den nichtlinearen Spektren beiträgt. Bei InGaAs-Quantenpunktsysteme ist die Linienbreite deutlich unterhalb der mit Einfach-Monochromatoren erreichbaren Auflösung. *Interface Quantenpunkte* in dünnen Quantenfilmen sind folglich sehr gut als erstes Modellsystem für die zeitaufgelöste Beobachtung der Polarisationsdynamik einzelner Quantenpunkte geeignet. Aus diesen Gründen beschränken sich die Experimente dieser Arbeit auf dieses Modellsystem. Eine mögliche Erweiterung des Experiments auf InGaAs Quantenpunkte wird im Ausblick diskutiert.

Kapitel 3

Grundlagen der kohärenten Halbleiter-Nahfeldspektroskopie

Ziel dieser Arbeit ist die direkte Beobachtung und Vermessung kohärenter und inkohärenter Dynamik einzelner Quantenpunktzustände nach optischen Anregung mit Femtosekunden-Zeitauflösung. Die Experimente werden mit Hilfe der Nahfeld Anrege-Abtastspektroskopie in Reflexionsgeometrie durchgeführt. Als Modellsystem dienen lokalisierte Exzitonen eines dünnen Quantenfilms.

Im folgenden Kapitel wird dargestellt, dass diese Methode geeignet ist, die Dynamik nach optischer Anregung zu beobachten. Zunächst wird die Entstehung der Exzitonenlokalisierung in ungeordneten Quantenfilmen betrachtet. Im Folgenden wird gezeigt, dass nahfeldoptische Methoden geeignet sind, optische Eigenschaften einzelner lokalisierter Exzitonen zu untersuchen. Die theoretische Beschreibung der Reflexionseigenschaften und der Polarisationsdynamik eines einzelnen Quantenpunkts erlaubt schließlich Rückschlüsse auf das zu erwartende Signal.

3.1 Elektronische und optische Eigenschaften von Halbleiterquantenfilmen

In Quantenfilmen führt der Wachstumsprozess zu lokalen Fluktuationen der Quantenfilmdicke (interface roughness [Bim86]) und zu Schwankungen der Legierungszusammensetzung (alloy disorder) [Wel85]. Dies resultiert in lokalen Bandlückenfluktuationen und damit in räumlichen Schwankungen der potentiellen Energie der Ladungsträger. Solche statischen Unordnungspotentiale führen zu einer Lokalisierung der Ladungsträger auf einer Längenskala von einigen Nanometern in lokalen Potentialminima entlang der Quantenfilmebene, sogenannten Grenzflächen-Quantenpunkten (*Interface Quantenpunkte*) [Bim99]. Die optischen Anregungen **einzelner** Grenzflächen-Quantenpunkte können in räumlich und spektral hochaufgelösten Experimenten selektiv untersucht werden [Hes94, Gam96a, Bon98a, Bon98b]. Um einen genauen Einblick in die optischen Eigenschaften solcher Quantenpunkte zu erhalten, betrachten wir zunächst den idealisierten Fall eines Quantenfilms ohne statische Unordnung. Im folgenden sollen kurz die linearen optischen Eigenschaften rauher Quantenfilme besprochen werden, da sie die Grundlage für die in dieser Arbeit untersuchten nichtlinearen optischen Eigenschaften einzelner Quantenpunkte bildet.

3.1.1 Theoretische Beschreibung idealer Quantenfilme

Der einfachste Fall eines idealen Quantenfilms ist eine dünne Schicht der Dicke L_z des Materials A, das beidseitig in dicke Schichten des Materials B eingebettet ist. Entlang der Wachstumsrichtung (z-Richtung) ist die Bandlücke ΔE_g im Material B größer als im Film A und Elektronen und Löcher sind im Film A eingeschlossen. Ein solcher Bandkantenverlauf führt zu einem Einschlusspotential $V_{c,a} = V_{B,a} - V_{A,a}$, ($a = e, h$) für Elektronen und Löcher (Abb. 3.1 (a)).

Während die Bewegung der Ladungsträger in diesem Potential entlang der Quantenfilmebene (x-y-Ebene) nicht eingeschränkt ist und somit kontinuierliche Eigenenergien zulässt, ist die Bewegung der Ladungsträger, die in diesem Potential eingeschlossen sind, entlang der z-Richtung nicht mehr frei. Die Eigenenergien sind auf quantisierte Werte E_{nz_a} beschränkt. Im Falle eines unendlich hohen Einschlusspotentials ($V_{c,a} \rightarrow \infty$) gilt: $(E_{nz_a}^{(a)} = \frac{\hbar^2}{2m_a} \left(\frac{nz_a\pi}{L_z} \right)^2$ mit $nz_a = 1, 2, 3, \dots$).

Die Berechnung der Energieniveaus erfolgt in der Näherung der langsam variierenden Envelope-Wellenfunktionen auf Basis des Kane-Modells zur Beschreibung der Elektronen- und Lochzustände in den Materialien A und B [Bas88]. Die Wellenfunktionen für Elektronen bzw. Löcher lassen sich in dieser Näherung beschreiben durch:

$$\psi_{nz_a,a}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}} u_a(\mathbf{r}) \chi_{a,nz_a}(z) \quad (3.1)$$

$k_\perp = k_x \mathbf{e}_x + k_y \mathbf{e}_y$ ist der Wellenvektor senkrecht zur Wachstumsrichtung, $u_a(\mathbf{r})$ die Blochwellenfunktionen im Material A bzw. B:

$$u_a(\mathbf{r}) = \begin{cases} u_{a,A}(\mathbf{r}), & \mathbf{r} \in A \\ u_{a,B}(\mathbf{r}), & \mathbf{r} \in B \end{cases} \quad (3.2)$$

und $\chi_{a,nz_a}(z)$ ist die Envelope-Wellenfunktion, die durch die eindimensionale Schrödinger-Gleichung mit einem Potentialverlauf

$$V_a(z) = \begin{cases} 0, & |z| < L_z/2 \\ V_{c,a}, & |z| > L_z/2 \end{cases}, \quad (3.3)$$

den Eigenenergien E_{a,nz_a} und der effektiven Masse

$$m_a^*(z) = \begin{cases} m_{a,A}^*, & |z| < L_z/2 \\ m_{a,B}^*, & |z| > L_z/2 \end{cases} \quad (3.4)$$

entlang der z-Richtung bestimmt ist:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_a^*(z)} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_a(z) \right) \chi_{a,nz_a}(z) = E_{a,nz_a} \chi_{a,nz_a}(z). \quad (3.5)$$

Die Berücksichtigung der Stetigkeitsbedingungen für $\chi_{a,nz_a}(z)$ und

$\frac{1}{m_a^*(z)} \frac{\partial \chi_{a,nz_a}(z)}{\partial z}$ an den Grenzflächen ermöglicht die numerische Berechnung der Eigenenergien und der zugehörigen Eigenfunktionen für Elektronen bzw. Löcher [Hau98]. Die Envelope-Wellenfunktionen besitzen dabei die Struktur:

$$\chi_{a,nz_a}(z) \propto \begin{cases} A_{-,nz_a} e^{K_{z,nz_a} z}, & z < -L_z/2 \\ B_{nz_a} \cdot \sin(k_{z,nz_a} z) + C_{nz_a} \cdot \cos(k_{z,nz_a} z), & |z| < L_z/2 \\ A_{+,nz_a} e^{-K_{z,nz_a} z}, & z > L_z/2 \end{cases} \quad (3.6)$$

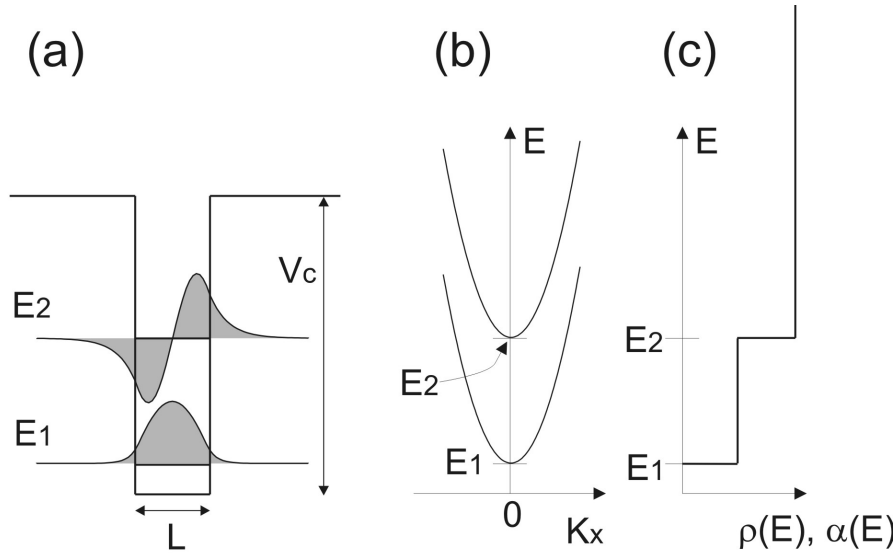


Abbildung 3.1: Fundamentale Eigenschaften eines idealen Quantenfilms (a) Der Bandkantenverlauf entlang der z -Achse (Wachstumsrichtung) führt zu einem Einschlusspotential V_C , Eigenenergien und zugehörige Envelope-Wellenfunktionen der untersten zwei Energiezustände. (b) Energiedispersion in der Quantenfilmebene der E_1 und E_2 - Subbänder. (c) Energieabhängigkeit der 2-D Zustandsdichte $\rho(E)$ und der Absorption $\alpha(E)$ für die ersten zwei Subbänder im Einteilchenmodell.

mit $K_{z,nz_a}^2 = 2m_{a,B}^*(V_{c,a} - E_{a,nz_a})/\hbar^2$ und $k_{z,nz_a}^2 = 2m_{a,A}^*E_{a,nz_a}/\hbar^2$, sowie zu bestimmenden Konstanten $(A_{\pm,nz_a}, B_{nz_a}, C_{nz_a})$.

Ist das Einschlusspotential endlich, besitzen die Eigenfunktionen der Envelope-Wellenfunktion eine sinusförmige Struktur innerhalb des Quantenfilms und fallen außerhalb im Material B exponentiell ab [Hau98]. Eine endliche Anzahl von im Material A eingeschlossenen Eigenzuständen mit diskreten Eigenenergien entstehen (Abb. 3.1 (a)). Im Gegensatz dazu fordert die Stetigkeitsbedingung für unendlich hohe Einschlusspotentiale ein Verschwinden des exponentiellen Anteils in B.

In der x - y -Ebene des Quantenfilms können die Eigenfunktionen durch ebene Wellen mit parabolischen Dispersionsrelationen beschrieben werden. Die gesamte Ladungsträgerenergie ergibt sich aus der Summe des entlang der z -Richtung quantisierten Terms und der kinetischen Energie entlang der x - y -Ebene (Abb. 3.1 (b)):

$$E_{nz_a}^{(a)} = E_{a,nz_a} + \frac{\hbar^2}{2m_{a,m}^*} (k_{\perp}^2), \quad m = A, B \quad (3.7)$$

Im *bulk*-Material werden die Lochbänder in diesem Modell durch 6 Basisfunktionen mit Drehimpuls $J = 3/2$ - bzw. $J = 1/2$ -Symmetrie beschrieben. Für $J = 3/2$ existiert eine vierfache Entartung des Valenzbandes für $k = 0$ (Schwerloch mit $m_J = \pm 3/2$, Leichtloch mit $m_J = \pm 1/2$) [Hau98].

Diese Entartung wird jedoch in Quantenfilmstrukturen aus Materialien unterschiedlicher Gitterkonstanten aufgehoben, da die induzierte Verspannung zu einer Reduzierung der ursprünglich kubischen oder sphärischen Symmetrie führt [Cho94].

Aus der eindimensionalen Quantisierung ergibt sich eine stufenförmige Energieabhängigkeit der Einteilchen - Zustandsdichte. Dies ist besonders interessant, da die Zustandsdichte

direkt das Absorptionsspektrum $\alpha(E)$ beeinflusst. So wird für einen Quantenfilm in der Einteilchen-Näherung ein ebenfalls stufenförmiges Absorptionsspektrum $\alpha(E)$ erwartet (vgl. Abb. 3.1(c)).

Exziton:

Bisher wurden die elektronischen Eigenschaften auf Basis einer Einteilchentheorie beschrieben. Der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern wurde vernachlässigt. Die beschriebene Einteilchen - Näherung ist in niederdimensionalen Halbleiternanostrukturen bei der Beschreibung der optischen Eigenschaften nicht gerechtfertigt, da diese stark durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern bestimmt werden. Die Bewegung von Elektronen und Löchern ist korreliert und wird durch die eines neuen Quasiteilchens, des Exzitons, beschrieben werden [Kno63]. Bei Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung sind die Einteilchen - Wellenfunktionen $\psi_{nz_e,e}$, $\psi_{nz_h,h}$ von Elektron und Loch keine Eigenzustände des effektiven Hamiltonoperators mehr.

In einem perfekten dreidimensionalen Kristall ist dieser gegeben als:

$$H = \left[-\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \nabla_e^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \nabla_h^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r |\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \right] \quad (3.8)$$

Dabei wirkt ∇_e (∇_h) ausschließlich auf die Ortskoordinaten des Elektrons (Lochs). m_e^* (m_h^*) beschreibt die effektive Masse des Elektron (Lochs) und ϵ_r ist die relative Dielektrizitätskonstante des Halbleitermaterials.

Der effektive Hamiltonoperator hat die Struktur des Wasserstoffatomoperators (vgl z. B. [The85]). Es lässt sich in Analogie zum Wasserstoffproblem für das Exziton eine Exzitonенbindungsenergie (E_0) und ein Exzitonенbohrradius (a_0) angeben. Im 3-D Fall sind diese:

$$a_0 = \epsilon_r \frac{m_0}{m_r} a_B = \frac{4\pi\hbar^2\epsilon_0\epsilon_r}{e^2 m_r} \quad E_0 = \frac{e^4 m_r}{2(4\pi)^2 \epsilon_0^2 \epsilon_r^2 \hbar^2} \quad (3.9)$$

Dabei ist $m_r = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*}$ die reduzierte Masse. Typische Werte für GaAs sind: $E_0 = 4$ meV und $a_0 = 10$ nm [Bas88].

Für einen Quantenfilm, bei dem die Schichtdicke in der Größenordnung oder kleiner ist als der Exzitonенbohrradius, ergeben sich Modifikationen der Wellenfunktionen und Exzitonенbindungsenergien.

Im Grenzfall eines idealen zweidimensionalen System mit unendlichem Einschlusspotential sind die Bindungsenergien des Exzitons durch $E_n^{2D} = -E_0 \cdot (n + 1/2)^{-2}$, ($n = 0, 1, \dots$) gegeben. Der Grundzustand E_0^{2D} weist eine viermal höhere Bindungsenergie als das *bulk*-Material auf [Hau98].

Die ideale Exzitonенbindungsenergie stellt eine theoretische Obergrenze dar. In realen Filmen wird mit abnehmender Filmdicke der Einfluss der Eindringtiefe in das umgebende Material zunehmend stärker. Dies limitiert die tatsächliche Exzitonенbindungsenergie. Experimentell wurden Bindungsenergien bis zu 14.5 meV bestimmt [Oel94].

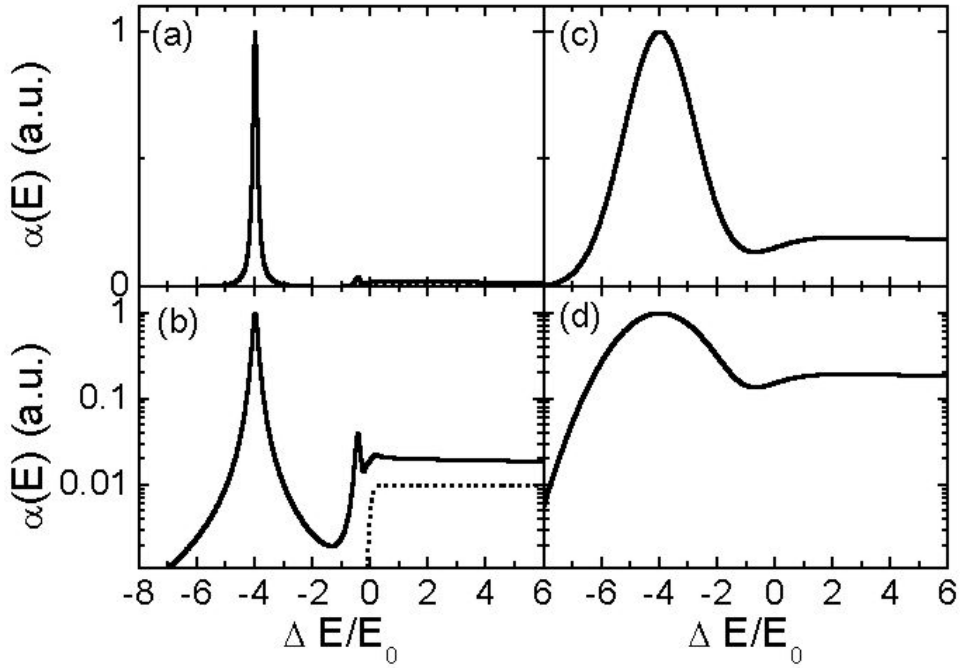


Abbildung 3.2: (a) Berechnetes Absorptionsspektrum eines idealen Quantenfilms unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung. Es wurde eine homogene lorentzförmige Linie mit einer Halbwertsbreite von $2\hbar\gamma = 1.6$ meV angenommen. Die 1s-Exzitonresonanz dominiert das Absorptionsspektrum. (b) Absorptionsspektrum mit (–) und ohne (···) Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung in halblogarithmischer Darstellung. Während das Absorptionsspektrum ohne Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung eine stufenförmige Charakteristik aufweist und direkt die Zustandsdichte wiedergibt, führt die Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung zu exzitonischen Absorptionslinien und zu einer Überhöhung der Kontinuumsabsorption. (c) Inhomogen verbreitertes Absorptionsspektrum eines Quantenfilms. Es wurde eine gaußförmige Verbreiterung mit einer Linienbreite von 11 meV angenommen. (d) halb-logarithmische Darstellung des inhomogen verbreiterten Absorptionsspektrums.

Absorption:

Eine in optischen Experimenten zugängliche charakteristische Größe ist das Absorptionsspektrum $\alpha(\omega)$. Exzitonische Effekte beeinflussen vor allem das Absorptionsspektrum nahe der Bandlücke (z. B. [Mar98, Har96, Che86]).

Berücksichtigt man nur optisch erlaubte direkte Übergänge ($\mathbf{k}_e = \mathbf{k}_h$), so lässt sich der Absorptionskoeffizient eines idealen Quantenfilms in Dipolnäherung unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung über die sogenannte *2-D-Elliotformel* theoretisch beschreiben [Ell57, Hau98]:

$$\alpha(\omega) \propto \alpha_0^{2D} \frac{\hbar\omega}{E_0} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{4}{(n+1/2)^3} \delta(\Delta + (n+1/2)^{-2}) + \Theta(\Delta) \frac{e^{\pi/\sqrt{\Delta}}}{\cosh(\pi/\sqrt{\Delta})} \right) \quad (3.10)$$

Dabei ist $\Delta = \frac{\hbar\omega - E_g}{E_0}$ die auf die Exzitonenbindungsenergie skalierte Energiedifferenz zwischen Photonenenergie und Bandkantenenergie. Die Amplitude der Absorption wird von dem Dipolmoment d_{cv} des Übergangs über $\alpha_0^{2D} \propto |d_{cv}|^2$ bestimmt. Die δ - und Θ -Funktionen be-

zeichnen Linienformen der Exzitonenabsorption bzw. der Absorption in Nähe der Bandkante, die durch Faltung der δ - bzw. Θ -Funktion mit einer reellen homogen oder inhomogen verbreiterten Linie (Lorentz, Gauß, bzw. Voigt) gebildet werden. Die Absorptionskoeffizienten unterschiedlicher Exzitonenresonanzen mit Bindungsenergien $E_0(n + 1/2)^{-2}$ skalieren mit $(n + 1/2)^{-3}$, $n = 0, 1, \dots$

Der 2-D Coulomb-Überhöhungsfaktor (oder 2-D Sommerfeld-Faktor)

$$C(\omega) = \frac{\alpha_{c,exc}}{\alpha_{free}} = \frac{e^{\pi/\sqrt{\Delta}}}{\cosh(\pi/\sqrt{\Delta})} \quad (3.11)$$

beschreibt den Einfluss der Coulomb-Anziehung auf die Kontinuumsabsorption ($\alpha_{c,exc}$) im Verhältnis zur Absorption freier Ladungsträger (α_{free}) [Hau98]. Die Coulomb-Wechselwirkung führt nicht nur zum Auftreten gebundener Exzitonzustände, sondern hat auch starken Einfluss auf die Kontinuumsabsorption (Abb. 3.2(a)). Im Grenzfall $\Delta \rightarrow 0$ nimmt $C(\omega)$ den Wert 2 an. Durch Einfluss der Coulomb-Anziehung wird die Bandkantenabsorption gegenüber α_{free} um den Faktor $1 \leq C(\omega) \leq 2$ erhöht. Das theoretische Absorptionsspektrum eines typischen Quantenfilms ist in Abb. 3.2(a) unter Berücksichtigung einer lorentzförmigen Linienbreite von 1.6 meV dargestellt. Die 1s-Absorption dominiert das Spektrum gegenüber höher angeregten Zuständen und der Kontinuumsabsorption. Deutlich wird auch die Überhöhung der Absorption nahe der Bandkante infolge der Coulomb-Wechselwirkung. Im Vergleich dazu zeigt die gepunktete Linie in Abb. 3.2(c) die Kontinuumsabsorption ohne den Einfluss des 2-D Überhöhungsfaktors.

3.1.2 Reale Quantenfilme: Einfluss der Unordnung auf optische und elektronische Eigenschaften

Die bisherigen Überlegungen beziehen sich allesamt auf idealisierte Quantenfilme ohne Unordnung. Auf atomarer Längenskala jedoch ändert die Oberflächenrauigkeit realer Grenzflächen die optischen und elektronischen Eigenschaften grundlegend. Trotz verfeinerter Wachstumstechniken sind geringfügige Fluktuationen der Schichtdicke von wenigen Monolagen nicht zu verhindern. Neben Monolagendickenfluktuationen führen Legierungsfluktuationen, die vor allem bei dem Einsatz ternärer Materialien (z. B. $Al_xGa_{1-x}As$) als Pufferschichten unvermeidlich sind, zu räumlich inhomogenen optischen und elektronischen Eigenschaften. In räumlich nicht aufgelösten optischen Experimenten wird oftmals eine inhomogene Verbreiterung der Absorptions- bzw. Emissionslinien detektiert. Vor allem in dünnen Quantenfilmen ist das Spektrum durch die inhomogene Verbreiterung dominiert (vgl. Abb. 3.2(b)). Die Linienbreite und Form der Linie - entnommen aus PL-Messungen - wird vielfach ausgenutzt, um die Qualität des Wachstumsprozesses zu überprüfen.

Die räumliche Fluktuation kann als lokale Variation der Valenz- und Leitungsbandenergien $W_a(\mathbf{r}_a)$ (Abb. 3.3(a)) beschrieben werden ($a = e, h$) [Zim97]. Unter Nutzung des Bloch-Theorems und Zerlegung der Einteilchen - Wellenfunktionen $\psi_a(\mathbf{r}_a) = \chi_a(\mathbf{r}_a) \cdot u_a(\mathbf{r}_a)$ in Blochfunktion $u_a(\mathbf{r}_a)$ und Envelope-Wellenfunktion $\chi_a(\mathbf{r}_a)$, lässt sich die Ein-Exziton-Schrödinger-Gleichung für die Envelope-Wellenfunktion des Gesamtsystems aus Elektron

und Loch $\chi_{nz_a,\alpha}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$ in effektiver Massenäherung angeben:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}_e}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_{\mathbf{r}_h}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} + W_e(\mathbf{r}_e) + W_h(\mathbf{r}_h) - E_{\lambda,\alpha} \right) \chi_{\lambda,\alpha}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = 0 \quad (3.12)$$

Dabei charakterisieren die Quantenzahlen λ die exzitonische Schwerpunktswellenfunktion und $\alpha = (nz_e, nz_h, n, l)$ die restlichen Freiheitsgrade.

Diese sechsdimensionale Schrödinger-Gleichung kann unter der Annahme einzelner, nahezu idealer Quantenfilme weiter vereinfacht werden. Bei nahezu idealen Quantenfilmen sind die Quantisierungsenergien entlang der Wachstumsrichtung (z -Achse) sehr viel stärker als in der Quantenfilmebene (x - y Ebene).

Unter dieser Annahme lässt sich die Envelope-Wellenfunktion faktorisieren in:

$$\chi_{\lambda,\alpha}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \xi_{e,nz_e}(z_e) \xi_{h,nz_h}(z_h) \Phi_{nl}(\rho_e - \rho_h) \psi_{\lambda}(\mathbf{R}) \quad (3.13)$$

Dabei ist $R = \frac{m_e \rho_e + m_h \rho_h}{M}$ die 2D-Schwerpunktskoordinate ($\rho_a = (x_a, y_a)$) mit kinetischer Masse $M = m_e + m_h$. Sowohl die z -Abhängigkeiten der Envelope-Wellenfunktionen $\xi_{a,nz_e}(z_e)$, als auch die Relativwellenfunktionen $\Phi_{nl}(\rho_e - \rho_h)$ folgen dann den Schrödinger-Gleichungen eines idealen Quantenfilms mit effektiven, von der Schwerpunktskoordinate unabhängigen Potentialen $\bar{W}_a(z) = \langle W_a(\mathbf{R}, z) \rangle$ [Zim92, Zim95]. Die Schwerpunktswellenfunktion (center of mass (COM)-Wellenfunktion) $\psi_{\lambda}(\mathbf{R})$ genügt einer zweidimensionalen Schrödinger-Gleichung

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2M} \nabla_{\mathbf{R}}^2 + V(\mathbf{R}) \right) \psi_{\lambda}(\mathbf{R}) = E_{\lambda} \psi_{\lambda}(\mathbf{R}) \quad (3.14)$$

mit einem effektiven Schwerpunktpotential (Abb. 3.3(b))

$$V(\mathbf{R}) = \sum_{a=e,h} \int d\mathbf{R}' \left(\frac{M}{m_a} \right)^2 \phi_{nl}^2 \left(\frac{M}{m_a} (\mathbf{R} - \mathbf{R}') \right) \int dz \xi_a(z) (W_a(\mathbf{R}', z) - \bar{W}_a(z)) \quad (3.15)$$

Die zugehörige Eigenenergie $E_{\lambda,\alpha}$ des Eigenzustands α mit Wellenfunktion $\chi_{\lambda,\alpha}$ setzt sich dabei zusammen aus den Elektronen-, den Lochenergien (E_{nz_e}, E_{nz_h}), der Eigenenergie der Schwerpunktsbewegung (E_{λ}) und der Exzitonenbindungsenergie $E_{X,\lambda,\alpha}$, die sich aus der Schrödinger-Gleichung für die Relativwellenfunktionen ergibt. $E_{\lambda,\alpha}$ ist gegeben durch :

$$E_{\lambda,\alpha} = E_{nz_e} + E_{nz_h} + E_{\lambda} - E_{X,\lambda,\alpha} \quad (3.16)$$

Das Exziton bewegt sich folglich in dieser Näherung als gebundenes Teilchen - charakterisiert durch die Relativwellenfunktionen $\Phi_{nl}(\rho)$ - in einem effektiven Schwerpunktpotential $V(\mathbf{R})$. Dieses wird durch Schwankungen der Quantenfilm-Zusammensetzung und damit der Bandkanten $\Delta W(\mathbf{R}, z) = (W_{\alpha}(\mathbf{R}, z) - \bar{W}_{\alpha}(z))$ auf kurzen Längenskalen $l < a_0$ hervorgerufen. Die hochfrequenten Schwankungen werden dabei durch die endliche räumliche Ausdehnung von $\phi_{nl}(\rho)$ geglättet (Abb. 3.3(b)).

Die grundlegende Idee dieses Modells besteht in der Annahme, das Exziton als neutrales Teilchen zu betrachten, dessen interne Wellenfunktion nahezu unbeeinflusst ist durch statistische Fluktuationen. Dagegen wird die Schwerpunktsbewegung des Exzitons entlang der Quantenfilmebene durch lokale Potentialfluktuationen stark beeinflusst. Die Eigenschaften

exzitonischer Wellenfunktionen werden vor allem in Nähe der Bandkante erheblich verändert. Die Eigenzustände der exzitonischen Schwerpunkswellenfunktion $\psi_\lambda(\mathbf{R})$ sind nicht mehr durch räumlich ausgedehnte ebene Wellen gegeben. Vielmehr führt das Unordnungspotential zu einer kohärenten Kopplung ebener Wellen. Neue, unterhalb der Bandkante gebundene, lokalisierte Eigenfunktionen $\psi_\lambda(\mathbf{R})$ werden gebildet [And58] (Abb. 3.4(a)).

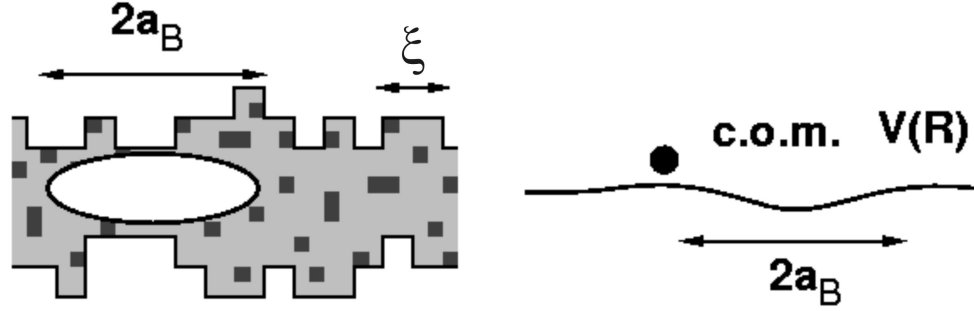


Abbildung 3.3: (a) Schematische Darstellung eines ungeordneten Quantenfilms mit Korrelationslänge ξ und Exzitonbohrerradius a_B . (b) COM-Potentialverlauf, entstehend aus der Faltung des lokalen Potentials mit der exzitonischen 1s-Relativ-Wellenfunktion (aus [Zim97]).

Diese *Anderson-Lokalisierung* [And58] ist eine grundlegende Eigenschaft ungeordneter quantenmechanischer Systeme und spielt eine entscheidende Rolle für die optischen und Transporteigenschaften vieler niederdimensionaler Festkörper. Sie liegt beispielsweise auch der Physik des Metall-Isolator Übergangs in dünnen metallischen Filmen zugrunde [Hae82, Mac81, Lee85]. Die entstehenden COM-Eigenfunktionen können in derartigen Systemen im Allgemeinen recht komplexe Strukturen und unterschiedliche Eigenschaften aufweisen. Einzig die am stärksten gebundenen niederenergetischen Zustände weisen in der Regel stark lokalisierte, nahezu gaußförmige Wellenfunktionen auf. Generell werden aber vor allem in Nähe der Bandlücke komplexe, fraktale Wellenfunktionen erwartet [Run02]. Die räumliche Ausdehnung der Wellenfunktionen, die bestimmend ist für die Kopplung an ein einfallendes optisches Lichtfeld, und damit der Grad der Delokalisierung steigt tendenziell mit zunehmender Eigenenergie an (vgl. Abb. 3.4(b)). Eine mittlere Exziton-Lokalisierungslänge l_λ kann über das Partizipationsverhältnis

$$(l_\lambda)^D = \frac{\int \psi_\lambda(\mathbf{R})^2 d\mathbf{R}}{\int \psi_\lambda(\mathbf{R})^4 d\mathbf{R}} \quad (3.17)$$

für D -Dimensionen bestimmt werden [Kra93, Run98c].

Die optischen Spektren nahe der Bandkante zeigen eine unordnungsinduzierte Verbreiterung, die oftmals gut durch eine Faltung der stufenförmigen Zustandsdichte mit einer gaußförmigen inhomogenen Verbreiterungsfunktion beschrieben werden kann [Zim97]. Dies geht einher mit einem komplexen Verlauf der Oszillatorstärke und infolgedessen des Absorptionskoeffizienten.

Die inhomogene Verbreiterung der optischen Spektren besitzt eine starke Abhängigkeit von der Quantenfilmdicke. Diese Verbreiterung ist für einen unendlich tiefen Potentialtopf der Dicke L_z durch

$$\sigma_{E,L_z} = \frac{\partial E}{\partial L_z} \Delta L_z = \Delta L_z \frac{\hbar^2 \lambda^2 \pi^2}{M} L_z^{-3} \quad (3.18)$$

bestimmt. Damit wird eine deutliche Verbreiterung des Absorptionsspektrums mit abnehmender Quantenfilmdicke und gleichzeitig ein Übergang von einem lorentzförmigen homogen verbreiterten zu einem gaußförmig inhomogen verbreiterten Spektrum erwartet.

Die optischen Spektren werden im wesentlichen durch dipol-erlaubte Übergänge bestimmt. Für dipol-erlaubte Übergänge ist die Oszillatorstärke verknüpft mit der Wahrscheinlichkeit Elektronen und Löcher an der gleichen Position zu finden. Für Exzitonen mit Schwerlochcharakter ($J = 3/2$, $m_J = \pm 3/2$) ist das optische Gewicht über das Matrixelement M_λ gegeben [Run98a]

$$M_\lambda^2 = \frac{3}{8\pi Q_{max}^2} \int d^2\mathbf{Q} \psi_{\lambda\mathbf{Q}}^2 \left(\frac{Q_{max}}{\sqrt{Q_{max}^2 - Q^2}} + \frac{\sqrt{Q_{max}^2 - Q^2}}{Q_{max}} \right), \quad (3.19)$$

wobei $\psi_{\lambda\mathbf{Q}}$ die Fouriertransformierte der COM-Wellenfunktion mit Exzitonenübergangsenergie E_λ , n den Brechungsindex und $Q_{max} = E_\lambda n / \hbar c$ den maximalen Impulsübertrag durch das Lichtfeld beschreibt [Run98b].

Im Falle stark lokalisierter Exzitonen vereinfacht sich das Matrixelement [Boc93]:

$$M_\lambda = \int d\mathbf{R} \psi_\lambda(\mathbf{R}). \quad (3.20)$$

Dies ist gleichbedeutend damit, dass Polaritoneffekte nicht berücksichtigt wurden [Cit93]. Der Absorptionskoeffizient $\alpha(\omega)$ ist über die optische Dichte $D(\omega)$ bestimmt:

$$\alpha(\omega) \sim D(\omega) = \pi \sum_\lambda |M_\lambda|^2 \delta^2(E - E_{\lambda,\alpha}) \quad (3.21)$$

$D(\omega)$ und $\alpha(\omega)$ zeigen einen komplexen Verlauf [Run02]. Die am stärksten lokalisierten Zustände am niederenergetischen Rand des Spektrums weisen im Allgemeinen kleinere Matrixmomente auf als Zustände in der Nähe der Bandkante. Oberhalb der Bandkante nimmt die Oszillatorstärke wieder ab, da die Wellenfunktionen mit zunehmender Energie und infolgedessen mit abnehmender Lokalisierung eine vermehrte Anzahl an Knoten aufweisen (vgl. Abb. 3.4(b)).

Zur theoretischen Simulation ungeordneter Quantenfilme ist eine realistische Beschreibung des zugrundeliegenden Unordnungspotentials $V(\mathbf{R})$ notwendig. Dabei werden die mittleren Eigenschaften durch die Korrelationsfunktion

$$\langle V(\mathbf{r})V(\mathbf{r}') \rangle = \sigma^2 f(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (3.22)$$

beschrieben. Hier bezeichnet $\langle \dots \rangle$ den Mittelwert über ein Ensemble zufälliger Konfigurationen des Unordnungspotentials und die Breite der Energieverteilung.

Für die Beschreibung des zugrundeliegenden Potentialverlaufs $V(\mathbf{R})$ wurden bislang zwei Modelle vorgeschlagen [Zim93, Cas98].

Ein erster Ansatz geht von Monolagenfluktuationen aus [Cas98]. Auf einem ansonsten idealen Quantenfilm der Dicke w werden Inseln angenommen, deren Dicke um eine Monolage erhöht ist ($w + 1$). Diese Inseln sind ebenfalls glatt. Keine zusätzlichen Potentialfluktuationen existieren. Der räumliche Potentialverlauf ist direkt durch die Dickenvariation $\delta w(\mathbf{R})$ bestimmt:

$$V(\mathbf{R}) \simeq -V_0 \delta w(\mathbf{R}) \quad (3.23)$$

δw kann nur die Werte 0 oder 1 annehmen. Die mittlere Quantenfilmdicke ist über die mittlere Inseldichte n gegeben: $\langle \Delta w \rangle = n$. Das statistische Dickenprofil kann beispielsweise über einen exponentiellen Korrelationsansatz

$$\langle \delta w(\mathbf{R}) \delta w(\mathbf{R}') \rangle - n^2 = n(1 - n) e^{-\frac{|\mathbf{R} - \mathbf{R}'|}{\xi}} \quad (3.24)$$

beschrieben werden [Cas98]. Hierbei ist ξ die typische Inselausdehnung.

Ein derartiger Potentialverlauf eignet sich gut zur Beschreibung von Proben, deren Spektren eine deutliche Monolagenaufspaltung zeigen. Mit zunehmender Abnahme der Inselausdehnung verliert die Monolagenaufspaltung an Bedeutung und eine inhomogen verbreiterte Absorptionslinie bildet sich aus.

Das zweite Modell beschreibt die statische Unordnung über eine gaußförmig oder exponentiell korrelierten Potentialverlauf. Für ein Gauß-korreliertes Potential ist die Korrelationsfunktion gegeben als:

$$\langle V(\mathbf{R}) V(\mathbf{R}') \rangle = \sigma^2 \exp(-|\mathbf{R} - \mathbf{R}'|^2 / 2\xi^2). \quad (3.25)$$

Die Parameter der Korrelationsfunktion sind durch die Potentialamplitude σ , also die energetische Breite der Verteilung und die Korrelationslänge ξ , die natürliche Längenskala des Problems, gegeben. Eine zugehörige Energieeinheit ist $E_c = \hbar^2 \xi^2 / 2M$. Savona *et al.* untersuchten die Skalierungseigenschaften der Schrödinger-Gleichung (Gln. 3.14) und zeigten, dass sie nur noch von einem einzigen unabhängigen Parameter, dem Verhältnis

$$\sigma / E_c \propto \sigma \xi^2 \quad (3.26)$$

abhängt [Sav99].

Abb. 3.4(a) zeigt eine 1-D Realisierung eines Gauß-korrelierten Exziton-Unordnungspotentials mit einer Korrelationslänge $\xi = 10$ nm und Potentialamplitude $\sigma = 5$ meV, sowie vier errechneter Eigenfunktionen ($\psi_0 - \psi_3$). Betrachtet man die Lokalisierungslänge der Eigenfunktionen (l_λ), so werden mehrere Eigenschaften deutlich: die Lokalisierungslänge ist deutlich größer als die Korrelationslänge ($l_\lambda \gg \xi$) und nimmt stark mit wachsender Eigenenergie zu. Sie variiert allerdings für eine gegebene Energie stark (Abb. 3.4(b)). Die Angabe einer einzigen Exzitonelokalisierungslänge für solch einen ungeordneten Quantenfilm ist nicht möglich.¹ Der Absorptionskoeffizient $\alpha(\hbar\omega)$ zeigt ein anderes Verhalten (Abb. 3.4(c)). $\alpha(\hbar\omega)$ steigt unterhalb der Bandkante mit wachsender Energie infolge der stärkeren Delokalisierung der Wellenfunktion an. Bei $\Delta E = 0$ wird ein Maximum erwartet, die etwa $2 - 3\times$ höher ist als die Absorption im niederenergetischen Bereich. Oberhalb der Bandkante nimmt die Absorption wieder stark ab, da die Wellenfunktionen in diesem Bereich eine hohe Anzahl an Knoten aufweisen. Diese koppeln damit nur schwach an das externe Lichtfeld.

Eine experimentelle Charakterisierung der Potentialkorrelation ist entscheidend für eine quantitative Beschreibung der optischen Eigenschaften niederdimensionaler Halbleitersysteme. Sie bildet auch die Grundlage für die Interpretation zeitaufgelöster Untersuchungen der Nichtgleichgewichtsladungsträgerverteilung.

Eine der Methoden, die geeignet ist, Einblick in die statistischen Eigenschaften des Potentials $V(R)$ zu gewinnen, ist die Autokorrelationsspektroskopie [Run98c, Int01, Int02, Fre01b].

¹Die Energieabhängigkeit von l_D und $\alpha(\hbar\omega)$ für 2D-Systeme ergibt qualitativ das gleiche Bild. Sie finden sich in [Sav02] wieder.

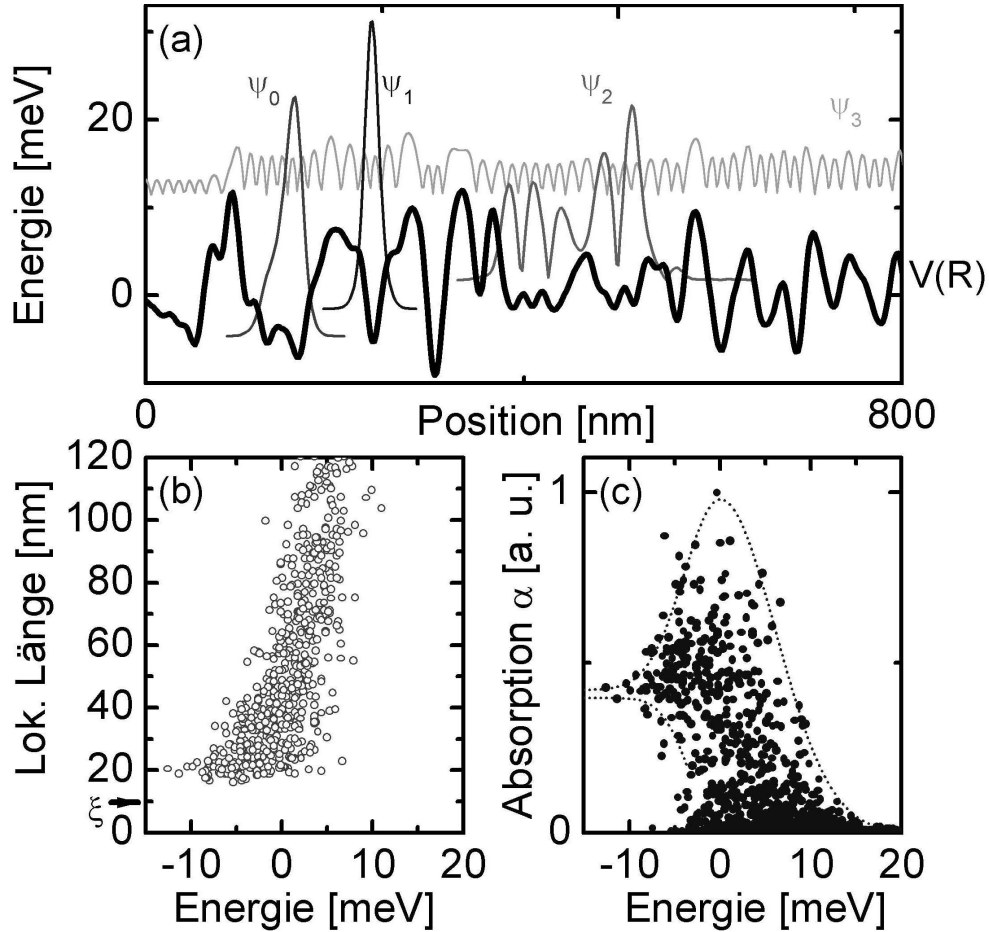


Abbildung 3.4: (a) Simulation des 1 - D Potentialverlauf eines rauen Quantenfilms mit vier zugehörigen Wellenfunktionen unterschiedlicher Eigenenergie ($\psi_0 - \psi_3$) ($E=0$: Bandkante). Es wurde eine Korrelationsenergie $\sigma = 5$ meV und eine Korrelationslänge von $\xi = 10$ nm gewählt. Niederenergetische Eigenzustände weisen stark lokalisierten Charakter auf. (b) Energieabhängigkeit der Lokalisierungslänge von 25 unterschiedlichen zufälligen Realisierungen des Quantenfilms mit obigen Parametern. Die Lokalisierungslänge ist deutlich größer als die Korrelationslänge ξ und steigt mit zunehmender Energie stetig an. (c) Errechnete Absorptionskoeffizienten $\alpha(\hbar\omega)$ einzelner Zustände. Stark lokalisierte Exzitonen am niederenergetischen Rand des Spektrums weisen kleine Absorptionskoeffizienten auf, diese steigt mit wachsender Eigenenergie und Lokalisierungslänge an. Für delokalisierte Zustände großer Eigenenergien ist der Absorptionskoeffizient gering.

Durch Vergleich mit Modellrechnungen ermöglicht sie insbesondere Informationen über die Korrelationslänge des Unordnungspotentials zu gewinnen [Int01]. Dazu werden eine Vielzahl von räumlich und energetisch hochaufgelösten Nahfeld-PL-Spektren an unterschiedlichen Orten der Probe aufgesammelt und einer statistischen Analyse unterzogen. Die spektrale Autokorrelationsfunktion

$$R_c(\Delta E) = R(\Delta E) - R_0(\Delta E), \quad (3.27)$$

mit

$$R(\Delta E) = A \left\langle \int dE' D_n(E') D_n(E' - \Delta E) \right\rangle, \quad (3.28)$$

und

$$R_0(\Delta E) = A \int dE' \langle D_n(E') \rangle \langle D_n(E' - \Delta E) \rangle \quad (3.29)$$

der experimentellen Spektren wird ausgewertet und mit Modellrechnungen verglichen. Dabei bezeichnet $\langle \dots \rangle$ die Mittelung über die individuellen Spektren $D_n(E)$. Diese Eigenschaften dieser Autokorrelationsfunktion wurden in [Run02, Sav99] detailliert theoretisch untersucht. Dabei zeigt sich, dass die endliche Ausdehnung der exzitonischen COM-Wellenfunktion und die damit verbundene Abstoßung der Energieniveaus E_λ von Zuständen mit räumlich überlappenden Wellenfunktionen zu einem charakteristischen Minimum in $R_c(\Delta E)$ um (ΔE) führt. Die spektrale Form dieses Minimums ist sehr empfindlich auf die Ausdehnung der lokalisierten exzitonischen Wellenfunktionen und damit auf die Korrelationslänge des Unordnungspotentials. Es wurde in [Int01] erstmals experimentell nachgewiesen. Aus der Analyse der PL Spektren eines (311)A GaAs Quantenfilms ließ sich damit die Korrelationslänge des Unordnungspotentials in dieser Probe zu $\xi = 17$ nm bestimmen. Eine genauere Beschreibung der Methode findet sich in [Int02].

Gegenwärtig ist es experimentell noch nicht gelungen, den Verlauf des Potentials $V(R)$ in einem hinreichend großen Raumbereich mit einer räumlichen Auflösung unterhalb des Exziton-Bohrradius zu vermessen, so dass zur Zeit auf Korrelationstechniken zur Bestimmung der statistischen Potentialparameter zurückgegriffen werden muss.

3.2 Nanooptik

Quantenpunkte besitzen Ausdehnungen von typischerweise wenigen 10 nm. Um diese isoliert beobachten zu können, bedarf es Methoden höchstauflösender optischer Spektroskopie. Eine Möglichkeit bietet die Nahfeldoptik, die die Beugungsbegrenzung der Auflösung konventioneller Mikroskopiemethoden durch Nutzung evaneszenter Wellen durchbricht.

3.2.1 Beugungsbegrenzung

Der Wellencharakter von Licht führt zu einer fundamentalen Grenze der räumlich-optischen Auflösung konventioneller optischer Mikroskopiemethoden. Sie ist über das Rayleigh-Kriterium begrenzt auf $0.61 \frac{\lambda}{NA} = 0.61 \frac{\lambda}{n \sin \delta}$ [Abb73, Ray96]. Dabei beschreibt $NA = n \sin \delta$ die numerische Apertur des Systems, $\sin \delta = f/L$ (f : Fokallänge des eingesetzten Objektivs, L : halber Linsendurchmesser). Sie beträgt bei Einsatz konventioneller Mikroskope mit einer NA von 1 ca. 0.6λ , also bei Wellenlängen um 800 nm etwa 500 nm. Zur Verbesserung der räumlich-optischen Auflösung sind viele unterschiedliche Ansätze mit propagierenden Lichtfeldern möglich. Sie basieren auf der Verwendung kurzwelliger Strahlung (z. B. Röntgenmikroskopie mit theoretischer Auflösungsbegrenzung im sub-nm Bereich [Sch98, Thi98]), bzw. auf einer Erhöhung der numerischen Apertur durch den Einsatz hochbrechender Materialien (z. B. Flüssigimmersionslinsen (NA bis 1.4) oder Festkörperimmersionslinsen mit Brechungsindizes n bis 3.2 [Ter94, Vol99]). Auch Mehrfachdurchlauf zur Erhöhung der Auflösung wird beispielsweise in der konfokalen Mikroskopie ausgenutzt [She97, Cor96, Wu99]. Dies führt zu einer praktisch erreichten Auflösung von etwa $\lambda/3$.

Durch Nutzung nichtlinearer optischer Methoden kann ebenfalls hohe räumlich-optische Auflösung in konventioneller Mikroskopie erreicht werden. Erwähnenswert sind hier die Methoden der Zwei- bzw. Mehrphotonenspektroskopie sowie des stimulierten Emissionspumpens [Kla01a, Kla01b]. Alle diese Methoden sind jedoch nicht geeignet die fundamentale Begrenzung, die über das Rayleigh-Kriterium bestimmt ist, zu durchbrechen.

3.2.2 Überwindung der Beugungsbegrenzung - Nahfeldmikroskopie

Eine der Möglichkeiten der Überwindung dieser fundamentalen Beugungsbegrenzung besteht in der Nutzung nichtpropagierender *evaneszenter* Felder. Ein klassisches Beispiel für das Auftreten evaneszenter Felder ist die frustrierte Totalreflexion [Goo47, Jac98]. Betrachtet man eine ebene Welle, die in einem Winkel $\theta > \theta_{krit} = \arcsin(\frac{n_2}{n_1})$ auf eine Grenzfläche trifft, wird die Welle totalreflektiert. Dennoch existiert ein exponentiell abfallendes elektrisches Feld jenseits der Grenzfläche mit einer Feldstärke [Sut01]:

$$E(z) \propto e^{-\text{Im}(k_z)z} = e^{-\frac{2\pi}{\lambda}z \cdot \sqrt{(n_1^2 \sin^2 \theta_i - n_2^2)}} \quad (3.30)$$

Dabei ist der Poynting-Vektor dieses evaneszenten Felds rein imaginär, d. h. es wird keine Energie abgestrahlt. Die Existenz dieses exponentiell abfallenden elektrischen Felds kann allerdings gezielt ausgenutzt werden, um die räumlich-optische Auflösung von Mikroskopen zu erhöhen.

Einen intuitiven Zugang zur Beschreibung von optischen Nahfeldern erhält man bei der Betrachtung der Strahlungscharakteristik eines *Hertzschen Dipols*. Diese soll in komplexer

Darstellung durchgeführt werden. Um physikalische Größen zu erhalten, muss im Folgenden der Realteil der angegebenen komplexen Größen betrachtet werden. Ein *Hertzscher Dipol* ist ein elektrischer Dipol, dessen positive Ladung am Ort \mathbf{r}_0 sitzt, und dessen negative Ladung sich in einer harmonischen Oszillation um \mathbf{r}_0 bewegt [Jac98]: $\mathbf{p}(t) = \mathbf{p}_0 \cdot e^{-i\omega t}$. Die von einem derartigen oszillierenden Dipol am Ort \mathbf{r} erzeugten Felder sind gegeben durch [Gre82]:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r}) &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \left\{ \frac{k^2(\mathbf{r} \times \mathbf{p}_0) \times \mathbf{r}}{r^2} \frac{e^{ikr}}{r} + \left(3 \frac{(\mathbf{r} \cdot \mathbf{p}_0)\mathbf{r}}{r^2} - \mathbf{p}_0 \right) \left(\frac{1}{r^3} - \frac{ik}{r^2} \right) e^{ikr} \right\} \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}) &= \frac{\mu_0\mu_r ck^2}{4\pi} \frac{(\mathbf{r} \times \mathbf{p}_0)}{r^2} e^{ikr} \left(1 - \frac{1}{ikr} \right)\end{aligned}\quad (3.31)$$

Hierbei werden Fern- und Nahfeldkomponenten berücksichtigt. Während die gesamte Strahlungsleistung $P(|\mathbf{r}|) = c^2 \sqrt{\mu_0\mu_r} k / (12\sqrt{\epsilon_0\epsilon_r}\pi) |\mathbf{p}_0|^2$ über alle Raumwinkel von den Fernfeldkomponenten

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_F(\mathbf{r}) &= \frac{\mathbf{B}_F(\mathbf{r}) \times \mathbf{r}}{r} \\ \mathbf{B}_F(\mathbf{r}) &= \frac{\mu_0\mu_r ck^2}{4\pi} (\mathbf{r} \times \mathbf{p}_0) \frac{e^{ikr}}{r^2}\end{aligned}\quad (3.32)$$

getragen wird, ist eine charakteristische Eigenschaft der Nahfeldkomponenten, dass der Poyntingvektor $S = 1/2(\mathbf{E} \times \mathbf{H}^*)$ rein imaginär ist [Gre82]. Das elektromagnetische Feld in unmittelbarer Umgebung des Dipols ($kr \ll 1$) wird von diesen räumlich hoch lokalisierten evaneszenten Nahfeldkomponenten dominiert. Die Nahfeldkomponenten des E- und B-Felds sind bestimmt durch [Gre82]:

$$\mathbf{E}_N(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \left\{ \frac{3(\mathbf{p}_0\mathbf{r})\mathbf{r}}{r^5} - \frac{\mathbf{p}_0}{r^3} \right\} e^{ikr} \quad (3.33)$$

$$\mathbf{B}_N(\mathbf{r}) = i \frac{\mu_0\mu_r ck}{4\pi} \left(\frac{\mathbf{r} \times \mathbf{p}_0}{r^3} \right) e^{ikr}. \quad (3.34)$$

Das elektromagnetische Feld in diesem Bereich ist vorwiegend elektrischer Natur. Das magnetische Feld ist wegen der zusätzlichen kr -Abhängigkeit sehr viel kleiner als das elektrische Feld.

Die obige Betrachtung legt nahe, dass eigentlich die ideale Nahfeldsonde durch einen einzelnen Dipolemitter (z. B. ein einzelnes Molekül an der Spitze der Nahfeldsonde) gegeben ist. Versuche dahingehend wurden in den letzten Jahren durchgeführt und in einem Demonstrationsexperiment vorgestellt [Mic00]. Die bisherige Auflösung von ca. 180 nm stellt jedoch noch keine starke Verbesserung zu konventionellen Methoden dar [Küh01]. Diese Limitierung beruht auf der technischen Schwierigkeit der Positionierung des Einzelmoleküls am Ende einer Nahfeldspitze.

Derzeit eingesetzte Nahfeldmikroskope beruhen deshalb zumeist auf dem Einsatz konzeptionell einfacher realisierbarer Sonden. Eine besondere Bedeutung kommt hierbei dem Einsatz kleiner Aperturen zu. Obwohl der Vorschlag der Nutzung von Aperturen schon Anfang des 20. Jahrhunderts unterbreitet wurde [Syn28, Bet44], dauerte es bis zum Anfang der achtziger Jahre bis eine erste technische Realisierung für Wellenlängen im sichtbaren Bereich gefunden wurde [Poh84, Lew84]. Die Basis bildet das Prinzip der Transmission evaneszenter

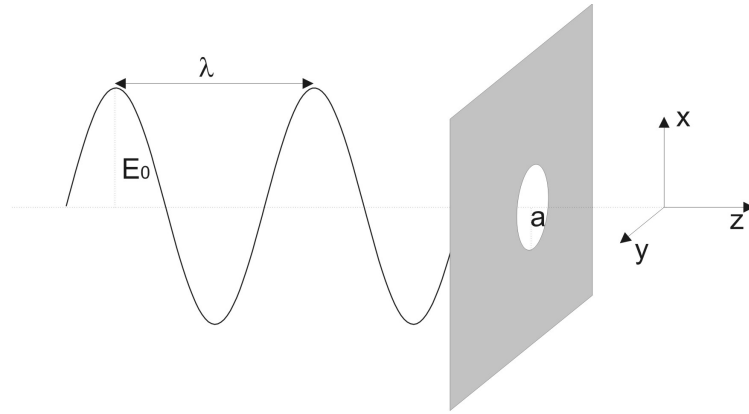


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung einer kreisförmigen Apertur mit Subwellenlängenausdehnung: Eine einfallende monochromatische ebene Welle, die entlang der x-Achse linear polarisiert ist, trifft auf die Apertur in einem ideal leitenden Metall. Zu dem durch die Apertur transmittierten Licht tragen Komponenten bei, die sowohl in x-, als auch in y- und z-Richtung polarisiert sind.

Wellen durch eine Apertur mit einem Durchmesser $d = 2a$, der deutlich kleiner ist als die Wellenlänge $d \ll \lambda$ (Abb. 3.5). In direkter Umgebung der Apertur, d. h. im Nahfeld, ist die räumlich-optische Auflösung vorwiegend durch die Ausdehnung der Apertur bestimmt, während die Beugung eine untergeordnete Rolle spielt.

Die Interpretation der erzielten Nahfeldspektren benötigt allerdings ein genaues Verständnis der Transmissionseigenschaften derartiger Nahfeldaperturen. Da die in Experimenten eingesetzten Nahfeldaperturen meist eine komplexe Geometrie besitzen, ist eine exakte Berechnung des emittierten elektrischen Felds äußerst aufwendig. Idealisierte Aperturen einfacherer Geometrie bilden allerdings ein gutes Modellsystem.

Die einfachste Nahfeldapertur besteht aus einer runden Öffnung mit Radius $a \ll \lambda$ in einer perfekt leitenden metallischen Oberfläche. Diese wird von einer Seite durch ein ebenes in der x-Achse linear polarisiertes einfallendes elektrisches Feld $E_0 \hat{x} \exp(-i(\omega t - kz))$ bestrahlt (Abb. 3.5).

Eine erste Lösung dieses Modellsystems wurde von Bethe 1944 gegeben [Bet44]; verbesserte analytische Lösungen des Felds in der Aperturebene folgten [Bou50a, Bou50b]. Die Lösungen zeigen, dass das transmittierte elektrische Feld nahe der Aperturöffnung annähernd auf den Aperturdurchmesser beschränkt ist. Wegen unterschiedlicher Stetigkeitsbedingungen für Tangential- und Normalkomponenten am Rand der Apertur, zeigt die räumliche Variation eine starke Richtungsabhängigkeit. Die Feldkomponente E_x parallel zur Polarisationsrichtung (x-Richtung) besitzt eine wurzelförmige Divergenz am Rand der Apertur. Dagegen befindet sich das Maximum der E_y -Komponente senkrecht zur Polarisationsrichtung (y-Richtung) im Zentrum der Apertur und die Amplitude fällt monoton nach außen ab. Eine räumlich-optische Auflösung, die durch den Aperturdurchmesser bestimmt ist, kann erreicht werden. Diese Auflösungseigenschaften sind allerdings nur möglich, falls die untersuchten Strukturen direkt an der Oberfläche liegen. In Halbleiterproben dagegen befindet sich die untersuchte Schicht in Tiefen von typischerweise wenigen 10 nm unter der Oberfläche, um gute optische Eigenschaften mit schmalen homogenen Linienbreiten zu gewährleisten [Hes94]. Deswegen ist für deren Untersuchung die Betrachtung der Abhängigkeit des elektromagnetischen Felds vom Abstand zur Apertur von großem Interesse.

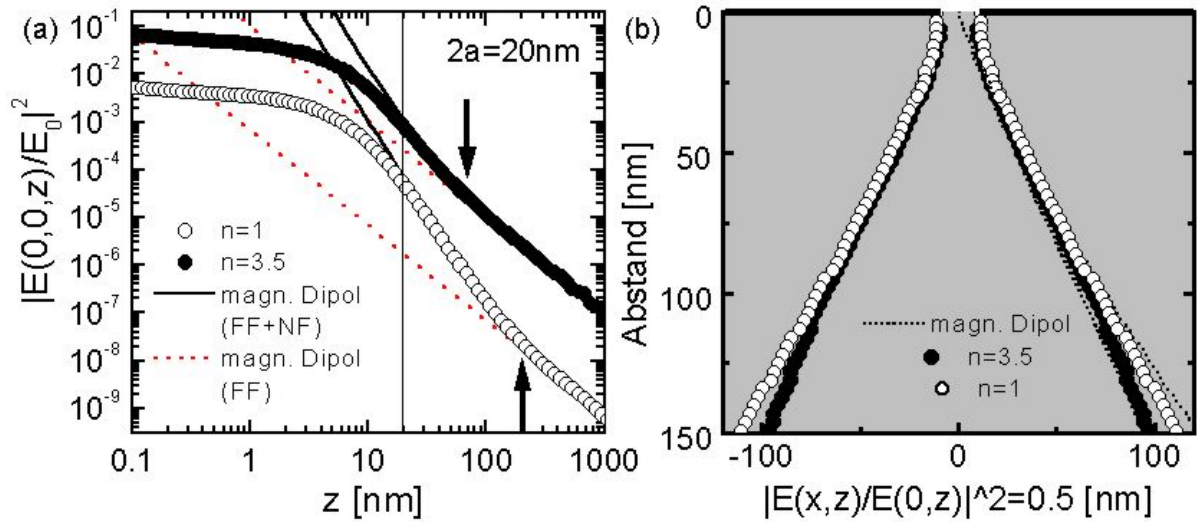


Abbildung 3.6: (a) Abstandsabhängigkeit der elektrischen Feldintensität $|E|^2$ senkrecht zu einer Apertur des Durchmessers $2a = 20$ nm für eine Wellenlänge von $\lambda = 800$ nm und für einen Brechungsindex $n = 1$ (\circ) und $n = 3.5$ (\bullet) hinter der Apertur. (—) Berechnete Feldintensität eines magnetischen Dipols, der entlang der y-Achse orientiert ist. (\cdots) Fernfeldbeitrag zu der Feldintensität des magnetischen Dipols. Die Pfeile (\downarrow , \uparrow) geben etwa den Abstand an, bis zu dem die Nahfeldkomponenten zu der gesamten Feldintensität beitragen. (b) Abstandsabhängigkeit der Halbwertsbreite w der Intensität für $n = 1$ (\circ) und $n = 3.5$ (\bullet). Die Halbwertsbreite ist in Nähe der Apertur vor allem durch den Aperturdurchmesser bestimmt. Für ($z > a$) nimmt die Halbwertsbreite stark zu.

Grober *et al.* [Gro96] gaben eine modifizierte Lösung der Ergebnisse von Bouwkamp [Bou50a, Bou50b] an, die eine Berechnung der Feldverteilung in unterschiedlichen Abständen von der Apertur ermöglicht. Die Lösung ergibt einen analytischen Ausdruck für die Fouriertransformierte des elektromagnetischen Felds. Sie erhält dessen Vektornatur, die Eigenschaften des Nahfelds im Grenzfall $z \rightarrow 0$ und des Fernfelds. Im Fernfeld entspricht die Feldverteilung der eines entlang der y-Richtung orientierten magnetischen Dipols $\mathbf{m} = -(4a^3)/(3\pi)\hat{\mathbf{y}}$. In Abb. 3.6 sind die Abstandsabhängigkeiten zweier für Experimente an Halbleiterstrukturen wichtiger Eigenschaften dargestellt, die sich über diesen Ansatz berechnen lassen. Die Abstandsabhängigkeit der Intensität, die die Anregungsdichte bestimmt, ist in (a) dargestellt, und die Halbwertsbreite der Intensität, die die mögliche räumlich-optische Auflösung festlegt, in (b). Für die Berechnung wurde eine Apertur mit einem Radius $a = 10$ nm angenommen. Diese wird von einer ebenen Welle der Wellenlänge $\lambda = 800$ nm bestrahlt. Nahe der Apertur fällt die Intensität nur geringfügig ab. Die Ausdehnung des Felds ist vorwiegend durch den Aperturradius bestimmt und ist wie die Intensität unabhängig vom Brechungsindex. Dieser Bereich beschränkt sich auf Abstände, die kleiner als der Aperturradius sind ($z < a$). Für größere Entfernungen ($z > a$) fällt die Intensität in guter Übereinstimmung mit einem magnetischen Dipol - inklusive Nahfeldkomponenten - nahezu exponentiell ab. Der Einfluss der Nahfeldkomponenten nimmt ebenfalls mit wachsendem Abstand ab. Sie beschränken sich auf einen Bereich $z \leq \lambda/(2\pi n)$, der vom Brechungsindex n des Mediums abhängt. Bei noch größerem Abstand ist die Feldverteilung gut durch einen magnetischen Dipol im Fernfeld gegeben.

Die Halbwertsbreite w von $|E(x, z)|^2$ zeigt ebenfalls für Abstände ($z > a$) eine starke Abstandsabhängigkeit (Abb. 3.6(b)). Sie nimmt mit wachsendem Abstand stark zu und nähert sich der Abstandsabhängigkeit für einen entlang der y-Achse orientierten magnetischen Dipol an [Gro96]. Im Bereich $a < z < 1/k = 40$ nm ist $w \propto \sqrt{2} \cdot z$. Für große Abstände im Fernfeld ($z \gg a$) ist w für den Vakuumbrechungsindex in guter Näherung gegeben durch: $w \simeq 2z$ (nicht dargestellt). Für Halbleiterproben mit großem Brechungsindex wird die z-Komponente des elektrischen Felds wegen der Stetigkeitsbedingungen an der Grenzfläche ($E_{n,Vac} = \epsilon_{HL} E_{n,HL}$) stark gedämpft. Die Auflösung des Fernfelds ist deshalb in Halbleiterproben durch die Auflösung der x-Komponente $w \propto \sqrt{2} \cdot z$ bestimmt.

Die Halbwertsbreite bestimmt die maximal erreichbare räumlich-optische Auflösung bei Transmission durch eine Apertur. Diese ist beispielsweise für typische Halbleiterstrukturen, deren untersuchte Schicht 50 nm unter der Oberfläche liegt, theoretisch auf etwa 80 nm begrenzt. Gleichzeitig ist in dieser Tiefe die Intensität senkrecht unterhalb der Apertur ($|E(0, 0, z)|^2$) bei einer Apertur mit 20 nm Durchmesser auf etwa 10^{-4} der eingestrahnten Intensität abgefallen.

3.2.3 Einsatz von Nahfeldsonden an Halbleiterproben

Nahfeldaperturen

Die Mehrzahl nahfeldoptischer Untersuchungen an Halbleiterproben wurde mit Hilfe der oben beschriebenen Apertur im Metallfilm durchgeführt (z. B. [Hes94, Gam96a, Ric97, Bon98a, Rob99, Fin00, Ach99, Ach01]). Zwei unterschiedliche Typen kommen zum Einsatz: Masken und Apertursonden. Masken bestehen aus kleinen Aperturen in einem ansonsten dünnen lichtundurchlässigen Aluminiumfilm, der auf die Probe aufgedampft wird [Hes94, Gam96a, Bon98a, Rob99, Fin00]. Für Apertursonden ist eine der Herstellungsmethoden von Betzig *et al.* eingeführt worden [Bet91]. Sie besteht aus metallbedampften stark zugespitzten Single-Mode Glasfasern, mit einer zu einer Spitze ausgezogenen oder geätzten Nahfeldsonde [Bet91, Lam98]. Durch die Bedampfung derartiger Sonden bilden sich Aperturöffnungen zwischen 20 nm und 500 nm. Sie ermöglichen Nahfeldauflösungen von bis zu 12 nm, wie an einzelnen Aluminiumkörnchen auf einer Glasoberfläche demonstriert werden konnte [Bet91]. An vergrabenen Halbleiterstrukturen wurden in Experimenten bisher meist nur Auflösungen von 100 - 200 nm erzielt. So konnte in Experimenten an 70 nm unter der Oberfläche vergrabenen Quantenpunkten auch für Aperturöffnungen unter 100 nm eine Auflösungslimitierung von 150 nm nicht unterschritten werden, obwohl die Anregung und Detektion durch die gleiche Apertur stattfand [Sai99]. Erst vor wenigen Monaten gelang es erstmals, mit speziell geformten, metallbedampften Doppel-Konus-Sonden [Sai99] in Photolumineszenz-Bildern von einzelnen InAs-Quantenpunkten eine räumlich-optische Auflösung von 40 nm zu erreichen [Mat02]. In diesem Fall war jedoch die Quantenpunktschicht nur etwa 20 nm unter der Oberfläche vergraben, was zu einer Verbreiterung der PL-Spektren auf mehrere Hundert μeV durch nichtstrahlende Rekombinationsprozesse führt.

Der Einsatz solcher metallbedampfter Sonden hat aber für nichtlineare Reflexionsmessungen an Halbleiternanostrukturen, wie sie in dieser Arbeit diskutiert werden einige entscheidende Nachteile. Der Großteil der eingekoppelten Lichtintensität wird intern in der Nahfeldsonde reflektiert, was zu einem starken, unerwünschten Signaluntergrund in nichtlinearen Reflexionsexperimenten führt und eine Detektion des von der Oberfläche reflektierten Lichtes

durch die gleiche Apertur kaum möglich macht. Gleichzeitig ist auch die Fernfelddetektion des reflektierten Lichts bei Einsatz von Apertursonden stark erschwert, da die umgebende Aluminiumschicht zumeist zu starken Abschattungseffekten führt. Diese Sonden sind damit für die in dieser Arbeit diskutierten Experimente in Reflexionsgeometrie nicht gut geeignet. Daher werden die nichtlinearen optischen Eigenschaften von Halbleiterstrukturen zumeist in Transmissionsgeometrie untersucht [Bon98a, Ach99, Ach01]. Dies erfordert den Einsatz transparenter Proben. Die Anzahl der möglichen Substrate ist begrenzt, da die Bandlücke größer sein muss als die Bandlücke der untersuchten Struktur. Ansonsten muss das Substrat z. B. mit Hilfe von Ätzmethode entfernt werden. Die Entfernung des Substrats birgt jedoch das Risiko, dass infolge des Ätzprozesses Verspannungen eingeführt werden, die die Probeneigenschaften irreversibel ändern.

Die Erstellung von Masken führt ebenfalls zu Änderungen der Probeneigenschaften. So zeigten Hetzler *et al.* eine substantielle Änderung und Verschiebung des Photolumineszenzspektrums eines 20 nm dicken GaAs-Quantenfilms nach dem Aufbringen der Masken [Het01a].

Aperturlose Sonden

Die Verbesserung der Auflösung auf etwa 10 - 20 nm durch die Verwendung von Streumethoden über den Einsatz aperturloser Sonden wäre eine andere Möglichkeit [Hil99]. Diese ist aber gerade an vergrabenen Halbleiterstrukturen wenig sinnvoll. Bei aperturlosen Sonden wird das Laserlicht im Fernfeld auf einen lokalen Streuer fokussiert. Es bildet sich ein evaneszentes Feld hoher Intensität aus, welches zur Erzielung einer hohen räumlich-optischen Auflösung genutzt wird. Die Eindringtiefe dieses evaneszenten Felds ist jedoch gerade in Halbleiterproben auf wenige nm beschränkt. Befindet sich die zu untersuchende Struktur jedoch in größerem Abstand, dominiert der propagierende Fernfeldanteil, der bei dieser Methode durch den Fokus des Lasers gegeben ist. Deshalb ist diese Methode nur wenig geeignet für nahfeldoptische Untersuchungen an vergrabenen Halbleiterstrukturen.

Unbedampfte Nahfeldsonden

Der niedrige Transmissionsgrad gehört zu den entscheidenden Nachteilen von Nahfeldaperturen. Sie beschränkt die Experimente zumeist auf eine Transmissionsgeometrie. Experimente in Reflexionsgeometrie erscheinen nur unter Einsatz unbedampfter Nahfeldsonden sinnvoll. Diese wurden auch in dieser Arbeit eingesetzt.

Es hat sich in dieser und einer vorangehenden Dissertation [Int02] gezeigt, dass zu einer konischen Spitze ausgezogene Single-Mode-Lichtleitfaser mit Öffnungswinkeln von ca. 30° sehr gut für räumlich hochaufgelöste Reflexionsmessungen an Halbleiterproben geeignet sind. Diese Sonden besitzen eine hohe, nahezu verlustfreie Transmissions- und Aufsammlerfähigkeit und sind weitgehend frei von Abschattungseffekten. Sie besitzen an vergrabenen Halbleiterstrukturen eine Auflösung, die deutlich unterhalb der Beugungsbegrenzung liegt. Daher kommen sie seit einiger Zeit vermehrt zum Einsatz [Lam98, Sai99, Stö99].

Müller und Lienau untersuchten die Auflösungs-eigenschaften unbedampfter Nahfeldsonden theoretisch. Sie simulierten die Impulspropagation eines 10 fs-Impulses mit Zentralwellenlänge $\lambda \simeq 800$ nm durch rotationssymmetrische unbedampfte Nahfeldsonden mit Öffnungswinkel von 50° und Plateauradien von 50 nm mit und ohne Abwesenheit einer Halbleiterprobe im Abstand von 20 nm [Mül00, Mül02b] und bestimmten die räumliche Intensitätsverteilung. In Abwesenheit der Halbleiterprobe ist das Intensitätsmaximum

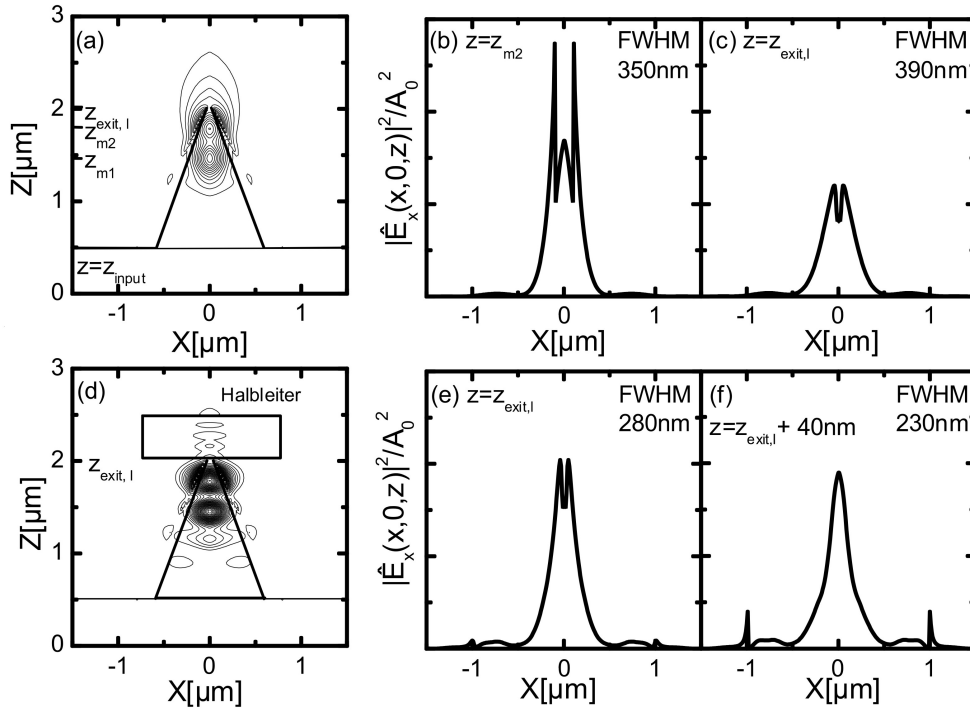


Abbildung 3.7: Simulierte Feldverteilung $|E_x(y, 0, z)|^2$ eines 10 fs-Impulses bei Propagation durch eine rotationssymmetrische Nahfeldapertur mit Plateauradius von 50 nm. Der einfallende Lichtimpuls ist linear entlang der x-Achse polarisiert und besitzt die Zentralwellenlänge $\lambda = 805$ nm. (a) Bei Abwesenheit der Halbleiterprobe ist die Spitzenintensität nicht an der Aperturöffnung, sondern bei z_{m1} und z_{m2} ca. 200 nm und 500 nm von dem Plateau entfernt. (b),(c) Querschnitte durch die Intensitätsverteilung (a) bei $z = z_{m2}$. (c) Intensitätsverteilung bei Anwesenheit einer Halbleiterprobe im Abstand von 20 nm zur Apertur. (e),(f) Querschnitte durch die Intensitätsverteilung am Plateau und im Abstand von 40 nm. Im Gegensatz zu (a)-(c) ist die minimale Intensitätsbreite außerhalb der Nahfeldapertur. Im Abstand von 40 nm wird eine Halbwertsbreite von ca. 230 nm erwartet (aus [Mül02b]).

und die minimale räumliche Intensitätsverteilung nicht am Plateau der Spitze gegeben, sondern ungefähr 500 nm innerhalb des Glasfasermaterials Abb. 3.7(a). Die minimale Breite an dieser Stelle beträgt etwa 260 nm. Ca. 200 nm innerhalb des Glasfasermaterials existiert ein zweites Intensitätsmaximum. Für dieses Maximum ist die Auflösung durch eine Halbwertsbreite von 350 nm bestimmt (Abb. 3.7(b)). Am Austrittspunkt ist die Auflösung des Impulses deutlich vermindert und beträgt mit 390 nm etwa $\lambda/2$ (Abb. 3.7(c)). In einem Abstand $z > 0$ von der Apertur verschlechtert sich die Auflösung zusehends (vgl. Abb. 3.7(a)).

Mit einer Halbleiterprobe ändert sich dieses Bild deutlich (Abb. 3.7(d)-(f)). Der hohe Brechungsindex der Halbleiterprobe führt zu einer zusätzlichen Auflösungserhöhung nach Austritt des Impulses aus der Sonde. In Abb. 3.7(f) ist der Querschnitt der Intensitätsverteilung im Abstand von $z = 40$ nm von der Apertur dargestellt. Die Halbwertsbreite der Intensität in dieser Entfernung lässt sich auf 230 nm angeben. Sie ist somit deutlich kleiner als diejenige an der Austrittsfläche der Apertur, die sich zu 280 nm ergibt.

Die theoretische Simulation legt nahe, dass bei der Untersuchung dielektrischer Medien mit

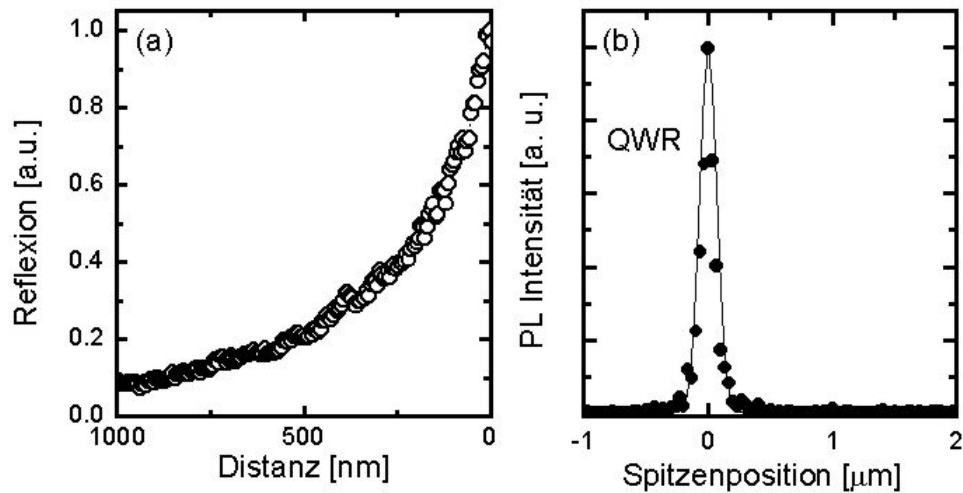


Abbildung 3.8: (a) Abstandsabhängigkeit der Reflexionsintensität einer geätzten, unbedampften Spitze in Anregung/Aufsamml-Geometrie. Ein nahezu exponentieller Abfall der Reflexionsintensität mit einer Abfalllänge von 260 nm ist zu erkennen. (b) Räumlich-optische Auflösung in *Anregungs-/Aufsamml*-Geometrie durchgeführt mit unbedampften geätzten Glasfaserspitzen. (●) Räumliches Profil der Lumineszenz eines Quantendrahts der Breite $d = 50$ nm ($E_{det} = 1.688$ eV, $T = 10$ K). (line): Gauß-Fit durch das PL-Profil mit einer Halbwertsbreite von 160 nm (aus [Int00]).

hohem Brechungsindex das untersuchte Medium großen Einfluss auf die Auflösung besitzt. Dabei führt die Anwesenheit eines dielektrischen Mediums zu einem starken Einschluss der Nahfeldverteilung im Dielektrikum. So wird für eine Halbleiterprobe erwartet, dass die Nutzung der *Anregungs-/Aufsamml*-Geometrie zu einer räumlich-optischen Auflösung von ungefähr 160 nm führt; eine Auflösung, die für Halbleiter ähnlich zu der von Apertursonden ist.

Dieses theoretisch berechnete Verhalten findet experimentelle Bestätigung. Die räumlich-optische Auflösung unbedampfter Nahfeldaperturen wurde z. B. von Intonti *et al.* untersucht [Int00]. Über die Detektion der Photolumineszenzemission eines einzelnen GaAs-Quantendrahts, der 70 nm unter der Oberfläche vergraben ist, konnte in einer *Anregungs-/Aufsamml*-Geometrie (*Illuminations-Kollektions*-Geometrie) eine räumlich-optische Auflösung von bis zu $\lambda/5$ demonstriert werden (vgl. Abb. 3.8, [Int00]). Das in den Experimenten beobachtete PL-Profil wird dabei gut durch eine Gaußfunktion mit einer Halbwertsbreite von 160 nm wiedergegeben.

Zusätzlich dazu weisen Reflexionsexperimente mit unbedampften Nahfeldsonden in einem Abstand von ca. $1 \mu\text{m}$ von der Probe eine starke Abstandsabhängigkeit auf. Dabei wird das in die Fasersonde eingekoppelte und intern oder an der Probenoberfläche reflektierte Licht durch die gleiche Spitze wieder aufgesammelt und als Funktion des Abstandes zwischen Spitze und Probenoberfläche detektiert. Man beobachtet bei diesen Spitzen einen nahezu exponentiellen Anstieg der reflektierten Intensität um mehr als einen Faktor 10 innerhalb einer Entfernung von $1 \mu\text{m}$ von der Probenoberfläche. Die Abstandskurve wird gut durch eine Exponentialfunktion mit einer Länge L_z von 260 nm wiedergegeben. Die geringe Untergrundintensität von weniger als 10%, die bei $z = 1 \mu\text{m}$ detektiert wird, zeigt, dass interne Reflexionen innerhalb der Fasersonde nahezu vollständig vernachlässigbar sind.

und nahezu das gesamte detektierte Licht von der Reflexion an der Probenoberfläche stammt. Auch dies ist in guter Übereinstimmung mit den zitierten Modellrechnungen. Damit ermöglichen diese unbedampften Sonden nahezu untergrundfreie Experimente in Reflexionsgeometrie.

Auch die hohe Transmissions- und Aufsammlfähigkeit wird anhand der reflektierten Intensität deutlich. An GaAs-Halbleiterproben werden bis zu 3% der in die Glasfaser eingekoppelten Leistung von der Nahfeldsonde aufgesammelt. Berücksichtigt man zusätzlich, dass die Probe nur etwa 30% der eingestrahlten Intensität reflektiert, ergibt sich ein kombinierter Transmissions- und Aufsammlkoeffizient von 10%. Das ist mehr als 2 Größenordnungen über den Erwartungen für metallbedampfte Apertursonden.

Diese sehr hohe Transmissions- und Aufsammeleffizienz bei gleichzeitiger hoher räumlicher Auflösung macht diese unbedampften Glasfasersonden für hochempfindliche nichtlineare Experimente an Halbleiternanostrukturen besonders geeignet.

3.3 Femtosekunden - Nahfeld - Anrege - Abtast - Spektroskopie

In den vorigen Kapiteln wurde dargestellt, dass nahfeldoptische Methoden die Möglichkeit bieten, einzelne Quantenpunkte isoliert zu untersuchen. Dieses wird in einer Vielzahl von Untersuchungen der stationären optischen Eigenschaften von einzelnen Quantenpunkten ausgenutzt [Bet93, Bon98a, Bon98b, Fin00, Sti02a]. Dabei lassen sich durch die Bestimmung der Linienbreiten der Emissionspektren Untergrenzen für die Dephasierungszeit kohärenter Polarisationen angeben. An InGaAs Quantenpunkten konnten erst kürzlich Linienbreiten von nur $2 \mu\text{eV}$ nachgewiesen werden, was einer Dephasierungszeit von mehr als 700 ps entspricht [Bay02].

PL-Emissionsspektroskopie bietet zugleich auch die Möglichkeit zeitaufgelöste Spektroskopie an einzelnen Quantenpunkten zu betreiben [Bac99, Rob99, Bec01, Sol01]. Zeitaufgelöste PL-Spektroskopie ermöglicht jedoch nur Zeitaufösungen von wenigen Pikosekunden [Sha92]. Sie bietet unter anderem die Möglichkeit Ladungsträgerrekombinationsdynamik zu beobachten [Rob99, Bac99]. Sie erlaubt aber keine direkte Beobachtung der Polarisationsdynamik.

Um einen direkten, zeitaufgelösten Zugang zu der Polarisationsdynamik auf Femtosekunden-Zeitskalen zu bekommen, ist der Einsatz von nichtlinearen optischen Techniken notwendig. Aufgrund der geringen von einem einzelnen Quantenpunkt zu erwartenden Signalstärke stellen solche Experimente hohe Anforderungen an die Detektionsempfindlichkeit. Besonders empfindlich sind Homodyn- oder Heterodyn-Detektionsverfahren. Bei derartigen Detektionsverfahren wird gezielt die Interferenz zwischen dem von der Quantenpunkt-Polarisation emittierten elektrischen Feld und einem externen elektrischen Feld nachgewiesen. So konnte mit zeitaufgelöster nichtlinearer Transmissionsspektroskopie mit Pikosekunden-Impulsen bereits Exziton- und Biexzitonlebensdauern bestimmt und Rabi-Oszillationen nachgewiesen werden [Sti01, Sti02a].

In dieser Arbeit wurde die Technik der Anrege-Abtast-Spektroskopie mit Femtosekunden-Zeitauflösung gewählt. Bei Anrege-Abtast-Experimenten wechselwirkt ein erster - zumeist intensiver - Lichtimpuls (Anregeimpuls) und ein um Δt zeitlich verzögerter, schwacher resonanter Lichtimpuls (Abtastimpuls) mit der Probe. Die Intensität des Abtastimpuls ist meist so gewählt, dass die Eigenschaften des Systems nicht, oder nur geringfügig geändert werden. Mit dem Abtastimpuls, der mit dem durch den Anrege-Impuls veränderten System wechselwirkt, kann die zeitliche Entwicklung einer Nichtgleichgewichts-Anregung nach anfänglicher Änderung in Echtzeit nachgewiesen werden. Dabei kann sowohl die Dynamik kohärenter Polarisationen als auch inkohärenter Besetzungen direkt in Echtzeit beobachtet werden.

Um eine gute Probenqualität ohne Gefahr irreversibler Änderungen durch Verspannungen sicherzustellen, wird die Reflexionsgeometrie gewählt. Aufgrund der geringen zu erwartenden Linienbreiten von unterhalb von $100 \mu\text{eV}$ und der geringen Signalstärken wird eine spektral aufgelöste Detektion des Abtastimpulses gewählt. Dazu wird das von der Probe reflektierte und durch die Nahfeldsonde aufgesammelte Abtastlicht von einem Monochromator in seine Spektralkomponenten aufgespalten und deren Intensität mit einer CCD-Kamera zeitintegriert detektiert. Der Kombination aus Monochromator und Detektor fungiert hierbei als Fouriertransformator. Sie wandeln das zeitabhängige elektrische Feld ($E(t)$) in

das frequenzabhängige elektrische Feld $\tilde{E}(\omega)$ um. Detektiert wird dann die Intensität dieses frequenzabhängigen Felds: $R = |\tilde{E}(\omega)|^2$:

$$\text{Nahfeldsonde} \longrightarrow E(t) \quad \underbrace{\longrightarrow \quad \tilde{E}(\omega) \quad \longrightarrow}_{\text{Monochromator} + \text{Detektor}} \quad |\tilde{E}(\omega)|^2 \quad (3.35)$$

Zur Bestimmung der Reflektivitätsänderung werden zwei Spektren aufgenommen. Zum einen wird ein Reflexionsspektrum bei einer Verzögerungszeit Δt detektiert ($R(\omega, \Delta t) = |\tilde{E}(\omega, \Delta t)|^2$) und dieses mit einem Spektrum bei einer Verzögerungszeit $\Delta t = -60$ ps verglichen ($R_0(\omega) = R(\omega, \Delta t = -60 \text{ ps})$). Diese Verzögerungszeit ist so groß gewählt, dass keine nichtlineare Wechselwirkung von Anrege- und Abtastimpuls mit der Probe stattfindet, der Abtastimpuls also das ungestörte System sieht. Die differentielle Reflektivitätsänderung bestimmt sich dann zu:

$$\frac{\Delta R(\omega, \Delta t)}{R_0} = \frac{R(\omega, \Delta t) - R_0(\omega)}{R_0(\omega)} \quad (3.36)$$

Zur Bestimmung der nichtlinearen Reflektivitätsänderung ist zunächst eine Betrachtung des von der Nahfeldsonde aufgesammelten zeitabhängigen elektrischen Felds sinnvoll. Dies soll in den nächsten Abschnitten genauer diskutiert werden, bevor in Abs. 3.6 eine Darstellung der möglichen Auswirkungen des Anregeimpuls auf das Reflexionsspektrum und die Reflexionsänderung erfolgt.

3.4 Reflexionseigenschaften inhomogener Halbleiterstrukturen

In diesem Abschnitt wird zunächst die Reflexion eines einzelnen Lichtimpulses an einem räumlich homogenen Quantenfilm und an einem einzelnen Quantenpunkt betrachtet. Dazu muß die aus den Maxwellgleichungen gebildete räumlich inhomogene Wellengleichung in Materie gelöst werden:

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \nabla \nabla \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \ddot{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = -\mu_0 \ddot{\mathbf{P}}(\mathbf{r}, t) \quad (3.37)$$

Die makroskopische Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ kann quantenmechanisch im Dichtematrixformalismus bestimmt werden [Muk95]:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \text{Sp}[\mu(\mathbf{r}, \mathbf{t}) \rho(\mathbf{r}, t)]. \quad (3.38)$$

Dabei bezeichnet Sp die Spur der Matrix $[\mu(\mathbf{r}, \mathbf{t}) \rho(\mathbf{r}, t)]$ und $\mu(\mathbf{r}, \mathbf{t})$ die Zeitentwicklung des lokalen Dipolmoments. Die zeitliche Entwicklung der Dichtematrix ist durch

$$\dot{\rho}(\mathbf{r}, t) = -\frac{i}{\hbar} [H(\mathbf{r}, t), \rho(\mathbf{r}, t)] = -\frac{i}{\hbar} [H_M(\mathbf{r}, t) + H_{el}(\mathbf{r}, t), \rho(\mathbf{r}, t)] \quad (3.39)$$

gegeben. Sie schließt Hamiltonoperator des Materiesystems H_M und dessen Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld H_{el} ein.

In den folgenden Kapiteln wird zunächst die Polarisation und deren Dynamik als bekannt

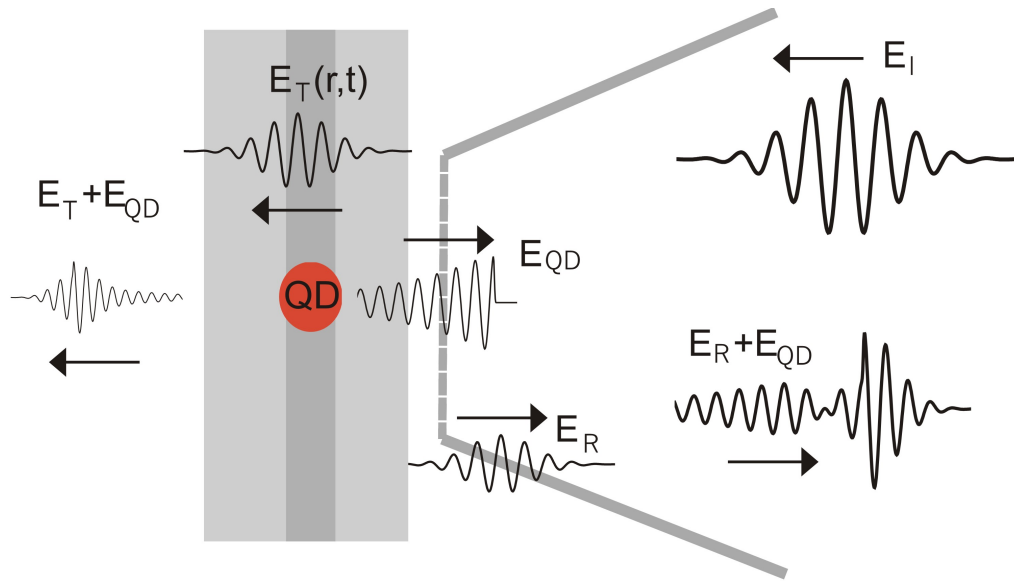


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung der Detektion der linearen optischen Eigenschaften eines einzelnen Quantenpunkts. Die Nahfeldsonde wird senkrecht über einen Quantenpunkt gesetzt. Das durch die Nahfeldsonde transmittierte einfallende elektromagnetische Feld (E_I) wird zum Teil an der Probenoberfläche reflektiert (E_R). Der transmittierte Anteil (E_T) treibt die Polarisation des Quantenpunktübergangs. Dieser strahlt ein elektromagnetisches Polarisationsfeld ab (E_{QD}) welches sich mit E_T bzw. E_R überlagert. In Transmissionsgeometrie wird die Überlagerung $E_T + E_{QD}$ detektiert. In Reflexionsgeometrie in Anregungs/Aufsammel-Konfiguration wird die Überlagerung $E_R + E_{QD}$ von der Nahfeldsonde aufgesammelt und detektiert.

angenommen. Die zeitliche Dynamik von ρ wird danach im Rahmen der *optischen Blochgleichungen* bzw. *Halbleiter-Blochgleichungen* betrachtet (vgl. Abs. 3.5.1, bzw. Abs. 3.5.2).

Unter Kenntnis der Polarisation $P(\mathbf{r}, t)$ kann die Berechnung des detektierten elektrischen Felds direkt aus der Wellengleichung unter Ausnutzung des Formalismus der Greens-Funktionen erfolgen. Diese Möglichkeit wurde für einzelne Quantenpunkte an der Oberfläche bereits zur theoretischen Beschreibung der Anregung bzw. der Detektion einzelner Nanostrukturen eingesetzt [Han97, Der00]. Sie erfordert aber einen hohen Rechenaufwand. Außerdem ist eine genaue Kenntnis der Struktur der Probe und der Nahfeldsonde wichtig für eine genaue Beschreibung des Bildkontrastes.

Die Möglichkeit einer qualitativer Beschreibung besteht in der Näherung, das elektrische Feld in die wesentlichen Komponenten, die zum Gesamtsignal beitragen, aufzuteilen und diese Teilfelder separat zu betrachten (vgl. Abb. 3.9). Anschließend werden die Komponenten wieder überlagert und durch deren Superposition zum Gesamtfeld zusammengesetzt. Abb. 3.9 erläutert schematisch das Prinzip der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente. Sie skizziert die Struktur einer typischen Quantenfilmprobe mit *Interface Quantenpunkten*, sowie den für die Experimente entscheidenden elektrischen Feldern. Dabei besteht die Probe aus einer Multilagenschicht (Quantenfilm eingebettet in zwei Pufferschichten) sowie einem Quantenpunkt, der in dem Quantenfilm eingebettet ist.

Das einfallende elektrische Feld (E_i) wird zum Teil an der Oberfläche transmittiert, $E_T(\mathbf{r}, t)$, und zum Teil an ihr reflektiert, $E_R(\mathbf{r}, t)$. Ein Teil des transmittierten Felds $E_T(\mathbf{r}, t)$ wird von den Nanostrukturen absorbiert und treibt eine Polarisation im Quantenpunkt bzw. Quan-

tenfilm. Diese Polarisation strahlt ein elektrisches Polarisationsfeld in Richtung des transmittierten ($E_T(\mathbf{r}, t)$) und reflektierten (E_R) elektrischen Felds ab und überlagert sich additiv mit diesen. Zusätzlich dazu wird ein Teil des transmittierten Felds an den unterschiedlichen in der Probe vergrabenen Grenzflächen reflektiert.

Die Detektion kann in Transmissions- oder Reflexionsgeometrie durchgeführt werden. Je nach Wahl der Detektionsgeometrie bestimmt sich das für die Detektion entscheidende elektrische Feld. In Transmissionsgeometrie ist dies über die Superposition von transmittierten elektrischen Feld und dem von der Materiepolarisation getriebenen elektrischen Feld E_{QD} gegeben:

$$E_{g,T}(\mathbf{r}, t) = E_T(t) + E_{QD}(\mathbf{r}, t)$$

Eine relativ einfache Interpretation ist möglich. Es wird direkt die Absorption detektiert [Muk95].

Wir haben uns in den Experimenten dennoch für die Reflexionsgeometrie entschieden, da nur dadurch sichergestellt ist, dass die Probenqualität nicht irreversibel verändert wird.

Das für die Detektion in Reflexionsgeometrie maßgebliche elektrische Feld ist:

$$E_{g,R}(\mathbf{r}, t) = E_R(t) + E_{QD}(\mathbf{r}, t) = R_{QFS}E_i(t) + E_{QD}(\mathbf{r}, t) \quad (3.40)$$

wobei für $E_R(t) = R_{QFS}E_i(t)$ **alle** Komponenten der an den unterschiedlichen Grenzflächen der Struktur reflektierten Felder zu berücksichtigen sind.

Für die Bestimmung des Gesamtfelds ist somit die gesamte räumliche Struktur der Probe zu berücksichtigen [Har96]. Es zeigt sich, dass die Tiefe, in der die Nanostruktur unter der Oberfläche vergraben ist, einen entscheidenden Einfluss auf das detektierte Reflexionsignal besitzt. Dieser Einfluss soll im Folgenden anhand mehrerer Schritte unter Annahme eines punktförmigen Emitters und Detektors näher untersucht werden:

Zunächst wird die Reflexion und Transmission an einer einzelnen Grenzfläche in Abhängigkeit der Frequenz ω betrachtet. Dies ist die Grundlage für die anschließenden Diskussion der Reflexion an einem dünnen Quantenfilm, sowohl in Resonanz, als auch im nichtresonanten Fall.

Zuletzt werden die Reflexion eines einzelnen Quantenpunkts betrachtet. Diese erfolgt in der Näherung eines punktförmigen Dipolemitters. Die Polarisation des Quantenpunkts wird als bekannt vorausgesetzt.

3.4.1 Reflexion und Transmission an einer idealen Grenzfläche

Als erstes werden die Reflexions- und Transmissionseigenschaften einer idealen Grenzfläche betrachtet. Bestimmende Größen hierfür sind die komplexen Brechungsindizes $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega)$ der Schichten, die die Grenzfläche bilden.

Trifft eine ebene Welle im Material 1 unter dem Winkel δ_1 auf die Grenzfläche zwischen Material 1 und 2, sind die Reflexionskoeffizienten ($r = E_r/E_0$) und Transmissionskoeffizienten ($t = E_t/E_0$) für parallel (\parallel) und senkrecht (\perp) polarisierte ebene Wellen über die *Fresnel-Formeln* gegeben [Hec90]:

$$r_{\perp,1 \rightarrow 2} = \frac{E_r}{E_0} = \frac{\tilde{n}_1 \cos(\delta_1) - \tilde{n}_2 \cos(\delta_2)}{\tilde{n}_1 \cos(\delta_1) + \tilde{n}_2 \cos(\delta_2)} \quad t_{\perp,1 \rightarrow 2} = \frac{E_t}{E_0} = \frac{2\tilde{n}_1 \cos(\delta_1)}{\tilde{n}_1 \cos(\delta_1) + \tilde{n}_2 \cos(\delta_2)} \quad (3.41)$$

für s-Polarisation, bzw.

$$r_{\parallel,1 \rightarrow 2} = \frac{E_r}{E_0} = \frac{\tilde{n}_2 \cos(\delta_1) - \tilde{n}_1 \cos(\delta_2)}{\tilde{n}_2 \cos(\delta_1) + \tilde{n}_1 \cos(\delta_2)} \quad t_{\parallel,1 \rightarrow 2} = \frac{E_t}{E_0} = \frac{2\tilde{n}_1 \cos(\delta_1)}{\tilde{n}_1 \cos(\delta_2) + \tilde{n}_2 \cos(\delta_1)} \quad (3.42)$$

für p-Polarisation. Dabei ist δ_t der Winkel des durch die Grenzfläche transmittierten Felds, der durch das Snelliussche Gesetz bestimmt ist:

$$\tilde{n}_1 \sin \delta_1 = \tilde{n}_2 \sin \delta_2. \quad (3.43)$$

Ist die einfallende Ebene Welle nichtresonant zu den zwei Schichten, spielt die Absorption für die Reflexion und Transmission eine untergeordnete Rolle. Zu berücksichtigen ist dann nur noch der Realteil des Brechungsindex: $\tilde{n} \rightarrow n$.

Zwei Typen von Grenzflächen sind von Interesse, da sie für die nachfolgenden Ausführungen eine große Rolle spielen: die Grenzfläche Vakuum-Barrierschicht, und die Grenzfläche Barrierschicht-Quantenfilm bei senkrechtem Einfall einer nichtresonanten ebenen Welle.

Besteht die Barriere aus AlGaAs mit einem Brechungsindex von $n_{AlGaAs} = 3.6$, so ergeben sich für die Grenzschicht Vakuum-Barriere folgende Reflexions- und Transmissionskoeffizienten:

$$r_{Vac \rightarrow AlGaAs} \simeq 0.565, r_{AlGaAs \rightarrow Vac} \simeq -0.565, t_{Vac \rightarrow AlGaAs} \simeq 0.435, t_{AlGaAs \rightarrow Vac} \simeq 1.565.$$

Analog gilt für die Grenzfläche Barriere-GaAs bei einem Brechungsindex $n_{GaAs} = 3.5$:

$$r_{AlGaAs \rightarrow GaAs} \simeq -0.014, r_{GaAs \rightarrow AlGaAs} \simeq 0.014, t_{AlGaAs \rightarrow GaAs} \simeq 1.014, t_{GaAs \rightarrow AlGaAs} \simeq 0.986.$$

Deutlich sichtbar ist, dass der Reflexionskoeffizient bei großer Brechungsindexänderung deutlich höher ist als bei kleinem.

3.4.2 Reflexionsspektrum eines idealen Quantenfilms

Als zweites wird die Reflexion und Transmission eines idealen Quantenfilms betrachtet. Dieser besteht im einfachsten Fall aus drei Schichten (Abb. 3.10): einer Barrierschicht der Dicke $d_2 = T$, dem Quantenfilm der Dicke $d_1 = d$ und einem dicken Substrat ($d_3 \gg d, l$). Das Material der Barrierschicht und Substrat ist z. B. AlGaAs mit einem komplexen Brechungsindex $\tilde{n}_1(\omega)$. Für den GaAs-Quantenfilm ist dieser $\tilde{n}_2(\omega)$.

Jede dieser Schichten wird durch zwei Grenzflächen begrenzt, die aufgrund der unterschiedlichen komplexen Brechungsindizes zu einem individuellen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten führen. Für die i -te Grenzfläche, die die Begrenzung zwischen der Schicht i und $i + 1$ darstellt, sind dies $r_{i \rightarrow i+1}$ und $(t_{i \rightarrow i+1})$. Beim Einfall einer ebenen Welle können diese über die vorhin dargestellten Fresnel-Formeln (3.41, 3.42) beschrieben werden.

Zur Bestimmung der reflektierten Intensität müssen alle Grenzflächen der Struktur mitberücksichtigt werden. Dies kann durch Superposition der von den unterschiedlichen Grenzflächen reflektierten Felder erfolgen.

Nichtresonantes E-Feld

Betrachtet man die Komponente zum reflektierten elektrischen Feld, die durch die Reflexion an der i -ten Grenzfläche hervorgerufen wird, so ist die elektrische Feldamplitude in erster Näherung unter Vernachlässigung von Vielfachreflexionen durch $E_i = \mathfrak{R}_i \cdot E_0$ bestimmt.

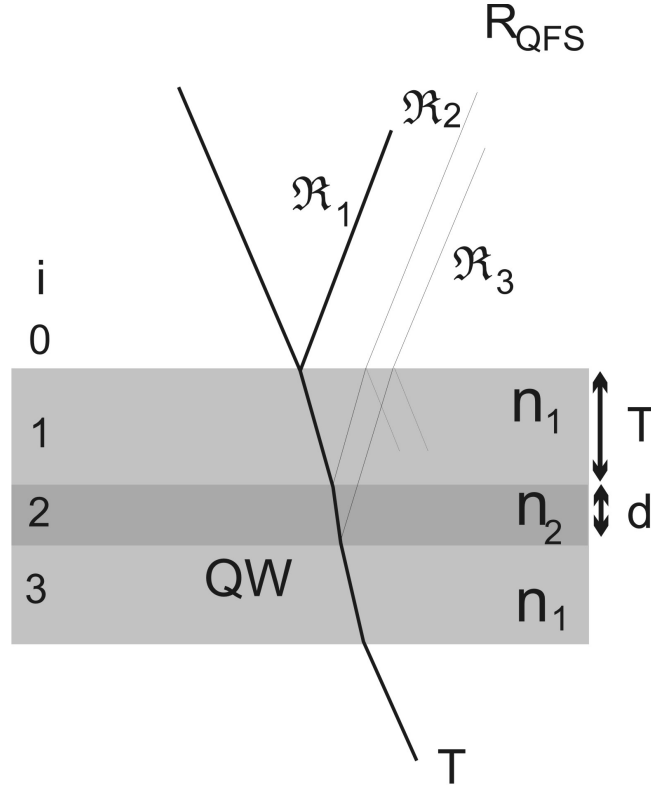


Abbildung 3.10: Schematische Darstellung eines idealen Quantenfilms und die unterschiedlichen Beiträge zum Reflexionsspektrum infolge Wechselwirkung mit einer einfallenden ebenen elektromagnetischen Welle. Die wesentlichen Beiträge \mathfrak{R}_1 - \mathfrak{R}_3 zum reflektierten Licht sind dargestellt.

Dabei ist \mathfrak{R}_i der jeweilige Reflexionskoeffizient:

$$\mathfrak{R}_i = r_{i \rightarrow i+1} \cdot \prod_{k=0}^{i-1} (t_{k \rightarrow k+1} \cdot t_{k+1 \rightarrow k}) \quad (3.44)$$

Die unterschiedlichen Reflexionskoeffizienten des betrachteten Dreischichtsystems ergeben sich folglich zu:

$$\mathfrak{R}_1 = r_{0 \rightarrow 1} \quad , \quad \mathfrak{R}_2 = r_{1 \rightarrow 2} \cdot t_{0 \rightarrow 1} \cdot t_{1 \rightarrow 0} \quad , \quad \mathfrak{R}_3 = r_{2 \rightarrow 3} \cdot t_{0 \rightarrow 1} \cdot t_{1 \rightarrow 0} \cdot t_{1 \rightarrow 2} \cdot t_{2 \rightarrow 1}.$$

Unter senkrechtem Einfall der ebenen Welle ($\delta_i = 0$) und bei schwacher Absorption in den unterschiedlichen Schichten (nichtresonanter Fall), ergeben sich für das oben beschriebene Beispielsystem AlGaAs-GaAs-AlGaAs die Amplituden der unterschiedlicher Reflexionskomponenten zu: $\mathfrak{R}_1 : \mathfrak{R}_2 : \mathfrak{R}_3 \simeq 0.565 : -0.0095 : 0.0095$. Die Reflexion an der Oberfläche (1. Grenzfläche) dominiert die weiteren Beiträge ($E_1 \gg E_2, E_3$). E_2, E_3 können folglich vernachlässigt werden. Sofort einsichtig ist auch, dass auch die Beiträge durch Mehrfachreflexion eine untergeordnete Rolle spielen.

Reflexionsspektrum eines idealen Quantenfilms

Der Einfluss der in der Quantenfilmprobe befindlichen Grenzflächen spielt jedoch bei der Untersuchung des Reflexionsspektrum eine wichtige Rolle. Insbesondere dürfen sie nicht

vernachlässigt werden, falls die Energie der einfallenden Welle nahe einer Absorptionsresonanz einer vergrabenen Schicht ist und ein Teil des einfallenden elektrischen Felds absorbiert wird. In diesem Fall werden die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten nicht ausschließlich durch die Brechungsindizes n_i bestimmt, sondern der Absorptionskoeffizient $\alpha = 4\pi\kappa/\lambda$ spielt eine entscheidende Rolle (vgl. Abb. 3.11).

Für ein N-Schichtsystem kann der Reflexionskoeffizient ($R(\omega)$) allgemein unter Berücksichtigung aller Reflexionen und Transmissionen sämtlicher Grenzflächen mit einer Transfermatrixmethode bestimmt werden [Ivc94, Kle98]. Eine einfallende ebene Welle:

$$S_0 = E_0 = \begin{pmatrix} E_0 & 0 \\ 0 & E_0 \end{pmatrix} \quad (3.45)$$

wird an der i-ten Grenzfläche, die durch die Schichten i und $i+1$ gebildet wird, transmittiert und reflektiert. Dabei ist:

$$S_{i+1} = \begin{pmatrix} S_{i+1,00} & S_{i+1,01} \\ S_{i+1,10} & S_{i+1,11} \end{pmatrix} = L_i \cdot H_i \cdot S_i, \quad (3.46)$$

mit der Transfermatrix

$$H_i = \frac{1}{t_i} \begin{pmatrix} 1 & r_i \\ r_i & 1 \end{pmatrix} \quad (3.47)$$

und den von den Schichtdicken d_i abhängigen Phasenfaktoren

$$L_i = \begin{pmatrix} e^{-i\beta_i} & 0 \\ 0 & e^{i\beta_i} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} l_i & 0 \\ 0 & l_i^* \end{pmatrix}, \quad (\beta_i = \frac{2\pi}{\lambda} n_i(d_i) \cdot \cos \delta_i, \quad d_0 = 0) \quad (3.48)$$

unter Einbeziehung des Brechungsindex $n(\omega)$ und der Absorption $\alpha(\omega)$ sämtlicher Schichten des Systems.

Die reflektierte elektrische Feld bestimmt sich dann unter Einschluss aller Grenzflächen zu:

$$E_R = \frac{S_{N,01}}{S_{N,11}} \cdot E_0 \quad (3.49)$$

Bei Kenntnis des Absorptions- und Brechungsindexspektrum kann so das Reflexionsspektrum errechnet werden.

Als Beispiel wird das Reflexionsspektrum eines 5 nm dicken GaAs-Quantenfilm, der in zwei AlGaAs-Barrierenschichten eingebettet ist, untersucht. Zur Bestimmung des Absorptionskoeffizienten wird in der Elliot-Formel (Gln. 3.10) eine lorentzförmige exzitonische Absorptionslinie mit einer Breite von $\hbar\gamma = 2$ meV und eine Kontinuumsabsorption von $\alpha_{free} = 1 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$ angenommen (Abb. 3.11(f)). Das Spektrum des Brechungsindex $n(\omega)$ wird aus dem Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ über die Kramers-Kronig-Relation bestimmt [Iba90] (Abb. 3.11(f)). Zur Bestimmung der Reflexionsspektren dient die bereits beschriebene Matrixtransfermethode. In Abb. 3.11 sind 5 Reflexionsspektren für diesen Quantenfilm in unterschiedlichem Abstand T zur Oberfläche dargestellt. Sie zeigt deutlich den Einfluss der absorbierenden Schicht und den dadurch gebildeten Grenzflächen. Wichtig ist, dass für den Fall einer verschwindenden Barrierenschicht ($T = 0$ nm) der Reflexionskoeffizient nicht ausschließlich durch den Realteil des Brechungsindex, d. h. $n(\omega)$, bestimmt ist (Abb. 3.11(a)).

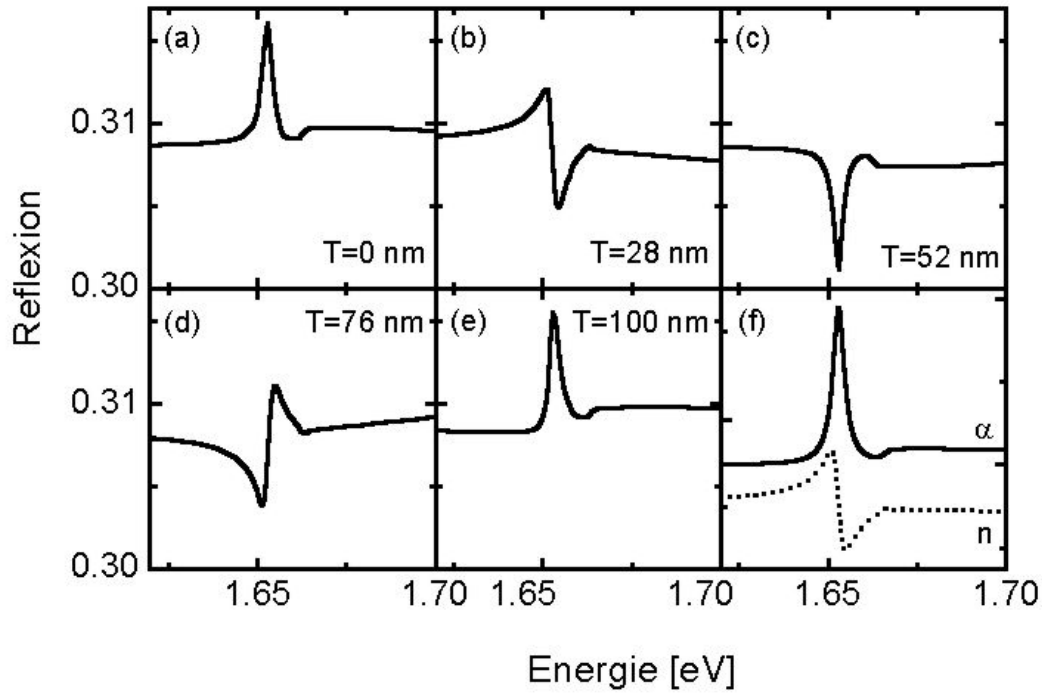


Abbildung 3.11: (a)-(e) Reflexionsspektren eines idealen 5 nm dicken Quantenfilms in unterschiedlichen Tiefen bei senkrechten Lichtsignalen. Zur Berechnung des Absorptions- und Brechungsindexspektrum des Quantenfilms (f) wurde eine Linienbreite von $2\hbar\gamma = 4$ meV und eine Absorptionskonstante $\alpha_{free} = 1 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$ angenommen. Während für $T = 0$ nm direkt das Absorptionsspektrum detektiert wird, sind die Spektren für $T = 21$ nm und $T = 76$ nm durch das Brechungsindexspektrum dominiert. Nach einer Periode von $p = 2nT/\lambda = 107$ nm wird wieder das Absorptionsspektrum in Reflexion detektiert.

Vielmehr zeigt sich - analog dem Absorptionsspektrum - ein lorentzförmiges Reflexionsspektrum.

Das Reflexionsspektrum eines dünnen Film weist somit ein deutlich anderes Verhalten als das Volumenmaterial auf. Die Form von $R(\omega)$ wird nicht wie im 3D-Fall im Wesentlichen durch den Realteil von $\tilde{n}(\omega)$ bestimmt, sondern kann je nach Entfernung T des Quantenfilms von der Oberfläche sowohl einen absorptiven als auch einen dispersiven Verlauf zeigen. In Abb. 3.11(a)-(e) sind Reflexionsspektren des für einen GaAs-Quantenfilm mit AlGaAs-Barrieren unterschiedlicher Dicke T dargestellt. Der Vergleich mit dem Absorptions- und Brechungsindexspektrum zeigt, dass das Reflexionsspektrum für Filmtiefen $T = 0$ nm, 52 nm, 107 nm einen absorptiven Charakter besitzt ((a),(c),(e)). In Tiefen von $T = 28$ nm oder 76 nm weist das Reflexionsspektrum einen dispersiven Charakter, ähnlich zu dem spektralen Verlauf des Brechungsindex $n(\omega)$, auf ((b),(d)). Der Wechsel zwischen absorptivem und dispersivem Charakter der Reflexion erfolgt periodisch. Die Oszillation besitzt eine Modulationsperiode $T_p = \frac{\lambda}{2n} \simeq 100$ nm.

Ein derartiges Verhalten wurde bereits in mehreren Reflexionsexperimenten an Quantenfilmen unterschiedlicher Tiefe experimentell bestätigt und auch theoretisch diskutiert [Zhe88, Tas92, Har96].

3.4.3 Reflexionseigenschaften eines einzelnen Quantenpunktes

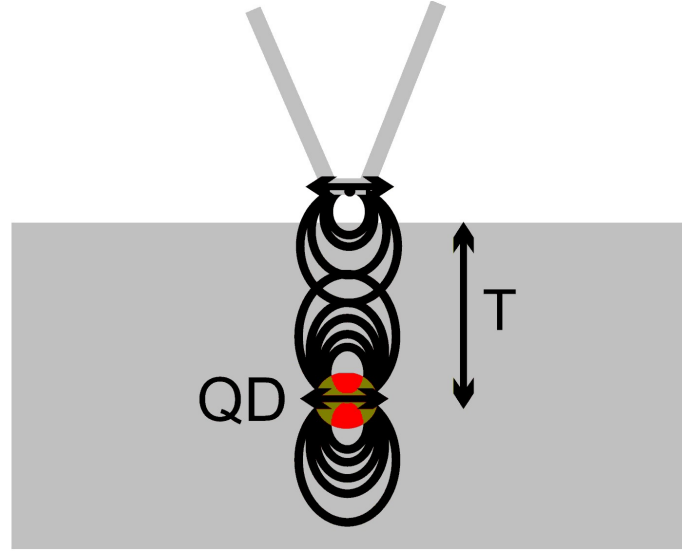


Abbildung 3.12: Schematische Darstellung eines Quantenpunktes, der in ein homogenes Medium mit Suszeptibilität χ_r eingebettet ist. Das durch die Nahfeldsonde transmittierte lokale elektrische Feld wechselwirkt mit dem Quantenpunkt. Dieser emittiert wiederum ein Feld, dessen räumliche Charakteristik gut durch einen Hertschen Dipol wiedergegeben werden kann. Mit der Nahfeldsonde wird dann das reemittierte Licht lokal wieder aufgesammelt.

Die bisherigen Betrachtungen gelten für homogene Quantenfilme. Es werden jedoch räumlich inhomogene, ungeordnete Quantenfilme untersucht. *Interface Quantenpunkte* bilden sich aus, deren Absorptionsenergien über das gesamte Absorptionsspektrum des Quantenfilms verteilt sind (vgl. Abs. 3.1.2). Im niederenergetischen Bereich werden die orts aufgelösten Spektren durch die Absorption eines einzelnen Quantenpunktes dominiert.

Ein derartiger Quantenpunkt soll nun betrachtet werden. In diesem Fall können die Reflexionen der vergrabenen Grenzflächen vernachlässigt werden. Als Modell für die Absorptions- und Abstrahlcharakteristik eines *Interface Quantenpunkt* im niederenergetischen Bereichs ist die Annahme eines punktförmigen Dipols angemessen, der umgeben ist von einem homogenen Halbleitermaterial (Brechungsindex: $n_{bulk}(\omega)$) (vgl. Abb. 3.12). Dessen Suszeptibilität bestimmt sich dann zu $\chi_{QD}(\mathbf{r}, t) = \chi_{QD}(t)\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$.

Betrachtet man die Nahfeldsonde als punktförmigen Emitter und Detektor an der Position \mathbf{r}_t , so kann das von der Nahfeldsonde abgestrahlte elektrische Feld in guter Näherung durch das eines magnetischen Dipols mit einem magnetischen Moment $\mathbf{m}(t) = \mathbf{m}_0 \cdot e^{-i\omega t}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$ unter Berücksichtigung der Dielektrizitätskonstante ϵ_r des Halbleitermaterials beschrieben werden (vgl. Abs. 3.2.2):

$$\mathbf{E}_T(\mathbf{r}, \mathbf{r}_t) = \frac{k^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{((\mathbf{r} - \mathbf{r}_t) \times \mathbf{m}(t))}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_t|^2} e^{ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}_t|} \left(1 - \frac{1}{ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}_t|}\right) \quad (3.50)$$

Die Wechselwirkung des elektrischen Felds mit dem Quantenpunkt treibt in diesem eine Polarisation:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \mathbf{r}_t, t) = \int \chi_{QD}(t') \mathbf{E}(t - t', \mathbf{r}, \mathbf{r}_t) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) dt' = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{p}_0(\mathbf{r}_t, t) \cdot e^{-i\omega_0 t} \quad (3.51)$$

für eine mit ω_0 oszillierende Polarisierung. Das sich ausbildende Polarisationsfeld dient als zusätzliche Quelle für die Maxwellgleichungen (3.37). Der Quantenpunkt strahlt also ein elektrisches Feld ab.

Dieses abgestrahlte elektrische Feld kann in guter Näherung durch das elektrische Feld eines Punktdipols beschrieben werden, das analog zu Gln. 3.31 gegeben ist als:

$$\mathbf{E}_{QD}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \mathbf{r}_t, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \cdot e^{-i\omega_0 t} \left\{ \frac{k^2 ((\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \times \mathbf{p}_0(\mathbf{r}_t, t)) \times (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|^2} \frac{e^{ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} + \left(3 \frac{((\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{p}_0(\mathbf{r}_t, t))(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|^2} - \mathbf{p}_0(\mathbf{r}_t, t) \right) \left(\frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|^3} - \frac{ik}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|^2} \right) e^{ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \right\} \quad (3.52)$$

wobei \mathbf{P} und \mathbf{p}_0 über die Suszeptibilität des Quantenpunkts $\chi_{QD}(\mathbf{r}, t)$ bestimmt ist.

Das von der Nahfeldsonde detektierte elektrische Feld ist dann durch die Überlagerung des an der Probenoberfläche reflektierten Felds mit dem vom Quantenpunkt abgestrahlten Polarisationsfeld bestimmt. Um diese Überlagerung jedoch bestimmen zu können, ist zunächst die Betrachtung der Phasendifferenz zwischen diese zwei Komponenten notwendig.

Phasendifferenz

Im Folgenden wird angenommen, dass sich die Suszeptibilität durch $\chi_{QD}(t) = \Theta(t)\chi_0 e^{-i\omega_0 t} e^{-\gamma t}$ mit der Dephasierungsrate γ beschreiben lässt. Zur Detektion des von der Probe reflektierten elektrischen Felds wird die Nahfeldsonde am Ort \mathbf{r}_t senkrecht über den Quantenpunkt am Ort \mathbf{r}_0 gesetzt.

Da Vielfachschichten vernachlässigt werden können ist das von der Nahfeldsonde aufgesammelte elektrische Feld bestimmt durch:

$$\mathbf{E}_D(t) = \mathbf{E}_R(\mathbf{r}_t, t) + \mathbf{E}_{QD}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, \mathbf{r}_t, t) = \mathbf{E}_{R,0}(t)e^{-i\omega t} + \mathbf{E}_{QD}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \mathbf{r}_t, t) \cdot e^{i\Delta\phi} e^{-i\omega t}$$

mit den maximalen zeitabhängigen Feldamplituden: $E_{R,0}(t)$ und $E_{QD,0}(t)$. Analog zu Reflexionsspektren dünner Quantenfilme ist für die detektierte Form des Reflexionsspektrums der Abstand T des Quantenpunkts zur Probenoberfläche von großer Bedeutung. Neben der Amplitude des anregenden elektrischen Felds am Ort des Quantenpunkts (vgl. Abs. 3.2.2) und des vom Quantenpunkt abgestrahlten elektrischen Felds am Ort der Nahfeldsonde, bestimmt der Abstand T zwischen Quantenpunkt und Nahfeldsonde die Phasendifferenz $\Delta\phi$ zwischen dem von der Probenoberfläche reflektierten Feld und vom Quantenpunkt emittierten Feld und legt fest, ob der Realteil oder der Imaginärteil der Quantenpunkt-Polarisation detektiert wird. Diese Phasendifferenz soll im Folgenden näher untersucht werden.

Die Phasendifferenz $\Delta\phi$ setzt sich zusammen aus der Phasendifferenz infolge des optischen Wegunterschieds zwischen Emitter und Quantenpunkt $\Delta\phi_w$, derjenigen zwischen anregendem elektrischen Feld und Quantenpunktpolarisation $\Delta\phi_p$, sowie der zwischen Polarisation und dem vom Dipol abgestrahlten elektrischen Feld am Ort des Detektors $\Delta\phi_E$. Zudem muss noch die Phasenverschiebung von π an der Probenoberfläche berücksichtigt werden, falls $n_{bulk} > 1$.

Zur Bestimmung der Phasendifferenz zwischen treibenden elektrischen Feld und der Quantenpunktpolarisation $\Delta\phi_p$ wird ein langsam veränderliches zeitlich oszillierendes elektrisches Feld betrachtet: $E(t) = E_0(t)e^{-i\omega t}$. Die Polarisation des Quantenpunkts bestimmt sich mit Gln. 3.51 zu:

$$P(t) = \frac{-e^2}{2m_0} \frac{1}{2i\gamma\omega + (\omega^2 - \omega_0^2)} E_0(t)e^{-i\omega t} \propto e^{-i(\omega t - \Delta\phi_p(\omega))}.$$

$\Delta\phi_p$ ergibt sich dann über:

$$\Delta\phi_p(\omega) = \arctan\left(\frac{\text{Im}(P(t)e^{i\omega t})}{\text{Re}(P(t) \cdot e^{i\omega t})}\right) = \arctan\left(\frac{2\omega\gamma}{\omega^2 - \omega_0^2}\right) \quad (3.53)$$

Bei resonanter Anregung ($\omega = \omega_0$) ist $\Delta\phi_p = \pi/2$.

Die Phasendifferenz zwischen Polarisation und reemittierten Feld eines oszillierenden Dipols am Ort der Nahfeldsonde erfolgt über die Betrachtung der charakteristischen Abstrahlung eines Dipols. Da die Dephasierungsrate γ klein gegenüber der Oszillationsperiode ω ist, wird diese vernachlässigt. Die Phasendifferenz kann dann über

$$\Delta\phi_E(T) = \arctan\left(\frac{\frac{k}{T} \cos kT + \left(k^2 - \frac{1}{T^2}\right) \sin(kT)}{-\frac{k}{T} \sin(kT) + \left(k^2 - \frac{1}{T^2}\right) \cos kT}\right) \quad (3.54)$$

in Abhängigkeit der Wegdifferenz T bestimmt werden.

Schließlich muss noch die Phasendifferenz zwischen reflektiertem Feld und elektrischem Feld am Ort des Quantenpunkts bestimmt werden. Für einen magnetischen Dipol bestimmt sich die abstandsabhängige Phasendifferenz senkrecht zur Richtung des magnetischen Moments zu:

$$\Delta\phi_w(T) = \arctan\left(\frac{\frac{1}{T} \cos(kT) + k \sin(kT)}{-\frac{1}{T} \sin(kT) + k \cos(kT)}\right) \quad (3.55)$$

mit $\Delta\phi_w(0) = -\pi/2$.

Die gesamte Phasendifferenz $\Delta\phi(T)$ zwischen dem von der Oberfläche reflektierten elektrischen Feld und dem vom Quantenpunkt abgestrahlten elektrischen Feld ist bei resonanter Anregung unter Berücksichtigung aller Komponenten:

$$\Delta\phi(\omega, T) \simeq -\pi \cdot \Theta(n_{bulk} - n_V) + \Delta\phi_p(\omega) + \Delta\phi_E(T) + \Delta\phi_w(T) - \Delta\phi_w(0). \quad (3.56)$$

Abb. 3.13 zeigt die aus Gln. 3.56 errechnete Phasenverschiebung zwischen reflektiertem elektrischen Feld und dem vom Quantenpunkt abgestrahlten elektrischen Feld in Abhängigkeit der Tiefe T unter der Oberfläche. Während für kleine Abstände die Phasenverschiebung nahezu konstant ist und $-\pi/2$ beträgt, ist sie für Abstände $T > 70$ nm monoton ansteigend. Interessant ist der nichtmonotone Verlauf Phasenverschiebung im Bereich einer Tiefe $T \simeq 40$ nm. 40 nm entspricht dem Abstand, in dem der Übergang von dominanten Nahfeldkomponenten zu dominanten Fernfeldkomponenten erwartet wird ($1/k = \lambda/2\pi n \simeq 40$ nm, vgl. Abs. 3.2.2). Da in dieser Tiefe jedoch bislang keine Reflexionsspektren an Quantenpunkte untersucht wurden, konnte dieser Verlauf bislang nicht verifiziert werden.

Reflexionsspektren

Die Tiefe des Quantenpunktes unter der Oberfläche bestimmt also wesentlich die Phasendifferenz $\Delta\phi$ und somit zu welchen Anteilen der Imaginärteil oder der Realteil des vom Quantenpunkt abgestrahlten elektrischen Felds nachgewiesen wird.

Abb. 3.14 ((c) - (g)) zeigt errechnete Reflexionsspektren von Quantenpunkten unterschiedlicher Tiefe in GaAs. Nicht berücksichtigt wurde die Abnahme der Feldintensität aufgrund der zunehmenden Tiefe. Die Absorption weist eine Linienbreite von $470 \mu\text{eV}$ auf. Die Tiefe wurde so gewählt, dass jeweils ein Phasenunterschied von $l\pi/2$ entsteht.

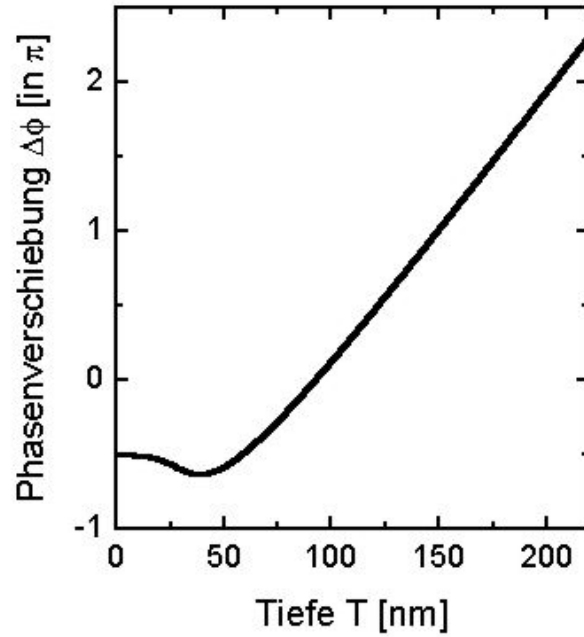


Abbildung 3.13: Berechnete Phasendifferenz zwischen von der Probenoberfläche reflektiertem elektrischen Feld (E_R) und vom Quantenpunkt abgestrahltem Feld E_{QD} in Abhängigkeit der Tiefe T .

Aufgrund des oben erwähnten nichtmonotonen Verlaufs der von $\Delta\phi(T)$ wird bei Tiefen von 0, 58, 121 und 176 nm im Reflexionsspektrum eine lorentzförmige Form beobachtet. $R(\omega)$ gleicht somit der Absorptionslinie. Dagegen wird bei 92 und 149 nm ein vorwiegend dispersives Reflexionsspektrum errechnet. Deutlich ist, dass im Gegensatz zu Halbleiterfilmen das Reflexionsspektrum des Quantenpunkts gerade bei geringen Tiefen durch den punktförmigen Charakter des Quantenpunkts und der Lichtquelle beeinflusst wird. Die Überlagerung der Nahfeld- und Fernfeldkomponenten der E-Feld-Abstrahlungen führt zu einer zusätzlichen tiefenabhängigen Phasenverschiebung, die das detektierte Spektrum beeinflusst und so zu einer nichtmonotonen Phasenverschiebung führt.

Die exakte Berechnung des zu erwarteten Reflexionsspektrum erfordert allerdings die Einbeziehung der Ausdehnungen der Lichtquelle, des Detektors und des Quantenpunktes. Die zu betrachtenden elektrischen Feldkomponenten können nicht mehr nur durch die senkrechten Komponenten betrachtet werden. Die optische Wegdifferenz und damit die effektive Phasenverschiebung wird dadurch erhöht. Der Übergang von Realteil zu Imaginärteil der Polarisierung wird folglich bereits bei geringeren Tiefen erwartet. An einer detaillierten theoretischen Simulation wird gegenwärtig gearbeitet.

Zusammenfassend ist wesentlich, dass sich das lokale Nahfeld-Reflexionsspektrum eines einzelnen Quantenpunktes in guter Näherung aus der kohärenten Überlagerung des an der Probenoberfläche reflektierten Lichtfelds $E_R(\mathbf{r}, t)$ und des von dem Quantenpunkt emittierten elektrischen Felds $E_{QD}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, t)$ am Ort der Nahfeldspitze \mathbf{r}_t zusammensetzt. Die Gesamtreflexion ist folglich

$$E_{g,R}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, t) = E_R(\mathbf{r}_t, t) + E_{QD}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, t).$$

Das vom Quantenpunkt abgestrahlte elektrische Feld $E_{QD}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, t)$ ist dabei bis auf eine

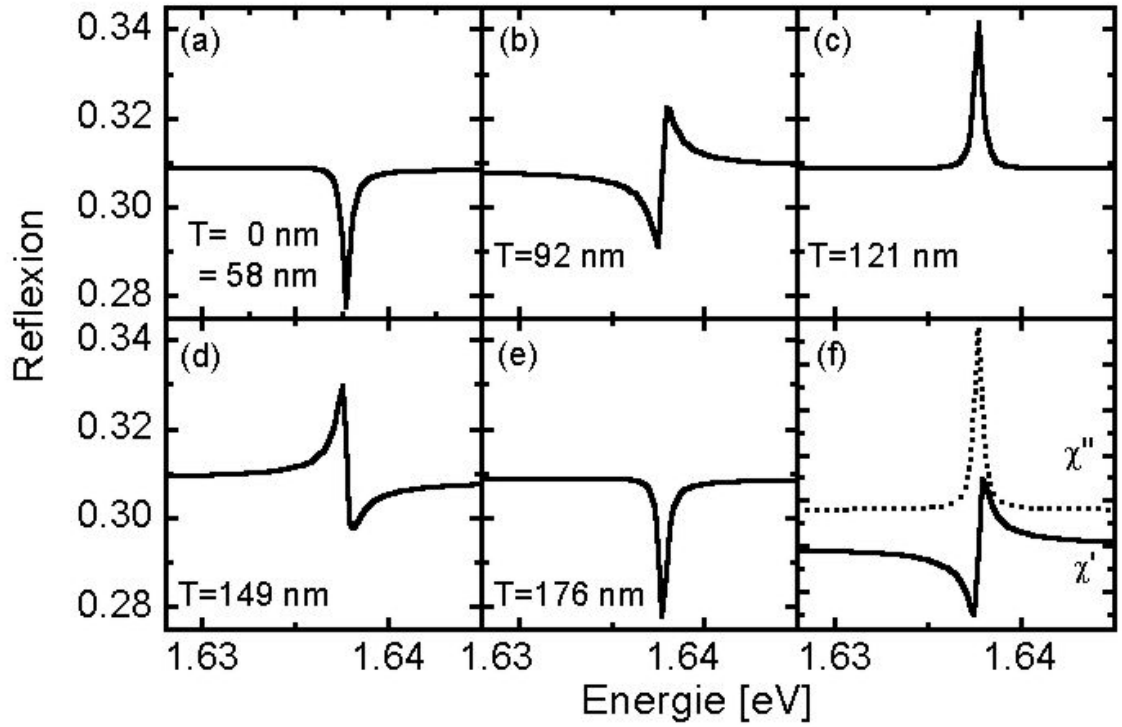


Abbildung 3.14: Theoretisch berechnetes lineares Reflexionsspektrum $R(\omega) = I(\omega)/I_0(\omega)$ eines einzelnen Quantenpunkts mit lorentzförmiger Absorption und einer Linienbreite $\hbar\gamma = 470\mu\text{eV}$ in Abhängigkeit von der Tiefe T unter der Oberfläche. Der Vergleich mit der Suszeptibilität $\chi_{QD}(\omega)$ zeigt - analog zu einem einzelnen dünnen Quantenfilm - dass die Tiefe T entscheidenden Einfluss auf die Form des Reflexionsspektrums aufweist. In Tiefen von $T = 0, 58, 121$ und 176 nm wird das Spektrum durch den Imaginärteil $\text{Im}(\chi(\omega))$ dominiert. Der Realteil $\text{Re}(\chi(\omega))$ ist in Tiefen von 92 und 149 nm bestimmend.

Phasenverschiebung $\Delta\Phi_R(T)$ proportional zur Quantenpunkt polarisation $P_{QD}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, t)$,

$$E_{QD}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, t) = ae^{i\Delta\Phi_R(T)} P_{QD}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, t). \quad (3.57)$$

Im Experiment wird das Gesamtfeld $E_{g,R}(\mathbf{r}_t, \mathbf{r}_0, t)$ spektral dispersiert, was einer spektralen Fouriertransformation entspricht. Das fouriertransformierte elektrische Feld hinter dem Monochromator ist proportional zu

$$\tilde{E}_R(\omega, T) = \int E_{g,R}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, t) e^{i\omega t} dt = \tilde{E}_R(\omega) + \tilde{E}_{QD}(\omega, T). \quad (3.58)$$

Anschließend wird das Signal mit einer CCD-Kamera detektiert. Die CCD-Kamera ist sensitiv auf die Intensität des eingestrahnten elektrischen Felds:

$$I_D(t) = R(\omega, T) = |E_{g,R}(\omega, T)|^2 = |\tilde{E}_R(\omega) + \tilde{E}_{QD}(\omega, T)|^2. \quad (3.59)$$

Da das von dem Quantenpunkt abgestrahlte elektrische Feld in der Regel sehr schwach gegenüber dem von der Probenoberfläche reflektierten elektrischen Feld ist ($\tilde{E}_{QD}(\omega) \ll \tilde{E}_R(\omega)$), kann $|\tilde{E}_{QD}(\omega, T)|^2$ in guter Näherung vernachlässigt werden.

Somit bestimmt sich das detektierte Signal unter Vernachlässigung der endlichen Monochromatenaufösung zu:

$$\begin{aligned} R_0(\omega, T) &= |\tilde{E}_R(\omega)|^2 + 2 \cdot \operatorname{Re} \left(\tilde{E}_R^*(\omega) \tilde{E}_{QD}(\omega, T) \right) \\ &= |\tilde{E}_R(\omega)|^2 + 2 \cdot \operatorname{Re} \left(\tilde{E}_R^*(\omega) \tilde{P}_{QD}(\omega) e^{i\Delta\phi(T)} \right) \end{aligned} \quad (3.60)$$

In Abhängigkeit der Tiefe, in der der Quantenpunkt vergraben ist, ändert sich die Phasenverschiebung und das Signal wird damit auf den Real- oder Imaginärteil der Polarisierung empfindlich. Dies wird später auch experimentell bestätigt.

Bei den meisten Messungen wurde $\Delta\phi$ so gewählt, dass der Imaginärteil von $P_{QD}(t)$ nachgewiesen wird.

$$R_0(\omega) \propto |\tilde{E}_R(\omega)|^2 + a \tilde{E}_R(\omega) \cdot \operatorname{Im} \left(\tilde{P}_{QD}(\omega) \right) \quad (3.61)$$

In diesem Fall ergibt sich für eine in Resonanz getriebene Resonanz eine lorentzförmige, d. h. absorptive Linienform des Reflexionsspektrums. Dies entspricht einer Phasenverschiebung von $(2 \cdot n + 1)/(2 \cdot \pi)$, $n \in \mathbb{N}$ zwischen reflektierten elektrischen Feld ($E_R(t)$) und dem vom Quantenpunkt abgestrahlten elektrischen Feld ($E_{QD}(t)$).

Da das spektral aufgelöste Messsignal $R(\omega)$ die Fouriertransformierte der Quantenpunkt-polarisation enthält (vgl. Gln. 3.59), besteht die Möglichkeit, bei bekanntem zeitlichen Verlauf von $E_R(t)$ und unendlicher Monochromatenaufösung, den zeitlichen Verlauf von $P_{QD}(t)$ vollständig zu rekonstruieren.

3.5 Kohärente Wechselwirkung von Licht mit Halbleiterquantenpunkten

Die Darstellung der Reflexionsintensität zeigt, dass das Suszeptibilitätsspektrum $\chi_{QD}(\omega)$ und somit die Polarisationsdynamik $P_{QD}(t)$ des Quantenpunkts das detektierte Signal wesentlich bestimmen. Eine theoretische Beschreibung der Polarisationsdynamik nach optischer Anregung ist daher der noch fehlende Teilaspekt zu einem vollständigen Verständnis der experimentellen Resultate. Diese soll in den nächsten Abschnitten gegeben werden.

Im kohärenten Bereich wird die Wechselwirkung zwischen einem sich zeitlich ändernden Lichtfeld und den optischen Übergängen einer Halbleiterstruktur sowohl durch die Dynamik der Polarisierung der Übergänge als auch durch die Besetzungsdichten der an den Übergängen beteiligten Zustände bestimmt. Sind die an der Dynamik beteiligten Zustände untereinander ungekoppelt, so lässt sich diese im Rahmen der bekannten optischen Bloch-Gleichungen beschreiben. Bei bisherigen Untersuchungen an Halbleiterquantenpunkten deuten die Ergebnisse auf isolierte, wechselwirkungsfreie Zweiniveausysteme hin [Bay02, Gam96a, Bon98a]. Es wurden beispielsweise in nichtlinearen Absorptionsexperimenten an einzelnen Quantenpunkten eine lorentzförmige Absorption mit ausschließlich homogener Linienbreite bestimmt [Bon98a].

Gerade in Halbleiternanostrukturen spielt jedoch die Coulomb-Wechselwirkung eine entscheidende Rolle. Eine Einbeziehung dieser Wechselwirkung führt zu den Halbleiter-Blochgleichungen [Sha92, Hau98].

In den folgenden Abschnitten sollen die optischen Blochgleichungen für ein Zweiniveausystem

sowie die Halbleiterblochgleichungen für ein ungeordneten Quantenfilm genauer diskutiert werden.

3.5.1 Optische Blochgleichungen

Die Dynamik eines isolierten Zweiniveausystems ist durch die Besetzungen des Grundzustands (f_0), des angeregten Zustandes (f_1) sowie der kohärenten Polarisation p_{01} des Übergangs bestimmt. p_{01} beschreibt ebenfalls die Phasenbeziehung zwischen Lichtfeld und angeregtem System. Im Ensemblemittel kann die Zeitentwicklung eines Zweiniveausystems dann durch eine hermitesche (2×2) -Matrix beschrieben werden (Dichtematrix):

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi| = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{10} \\ \rho_{01} & \rho_{00} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_1 & p_{01}^* \\ p_{01} & f_0 \end{pmatrix} \quad (3.62)$$

p_{01}^* beschreibt das konjugiert Komplexe der Polarisation p_{01} . In Analogie zur Liouville-Gleichung der klassischen Mechanik, läßt sich die Dynamik der Dichtematrix durch die von-Neumann Gleichung beschreiben [Blu89]²:

$$\dot{\rho} = \frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] = -\frac{i}{\hbar} \times (H\rho - \rho H) \quad (3.63)$$

Die zeitabhängige Störung des quantenmechanischen Systems durch Wechselwirkung mit dem Lichtfeld wird in Dipolnäherung beschrieben:

$$H(t) = H^0 + H^{int}(t) = H^0 - \mu E(t) \quad (3.64)$$

μ ist dabei das Dipolmoment des Übergangs. Untersucht man die Dynamik in der Basis des ungestörten Hamiltonoperators ($H^0|\psi\rangle = \epsilon_\psi|\psi\rangle$ mit Eigenenergien ϵ_ψ), so gehen die Bewegungsgleichungen der Observablen in die „optischen Blochgleichungen“ über. Für ein Zweiniveausystem sind diese:

$$\begin{aligned} \dot{p}_{01} &= i\frac{(\epsilon_1 - \epsilon_0)}{\hbar}p_{01} - \frac{i}{\hbar}\mu_{01}E(t)(f_0 - f_1) - \gamma p_{01}(t) \\ \dot{f}_1 &= -\dot{f}_0 = \frac{i}{\hbar}(-\mu_{01}E(t)p_{01}^*(t) + \mu_{01}^*E^*(t)p_{01}(t)) - \Gamma f_1(t) \end{aligned} \quad (3.65)$$

$\mu_{01} = \langle 1 | -e\mathbf{r} | 0 \rangle$ beschreibt das Übergangsdipolmoment der Zustände. Die Besetzungen der Zustände sowie die Polarisation des Zweiniveausystems sind nur über das zeitlich veränderliche elektromagnetische Feld $E(t)$ gekoppelt. Bei Abwesenheit des elektrischen Felds (nach der Wechselwirkung) entwickeln sie sich unabhängig voneinander weiter. Dabei rotiert die Polarisation mit der Eigenfrequenz des Übergangs: $\omega_0 = (\epsilon_1 - \epsilon_0)/\hbar$. Im mit der Polarisation rotierenden Rahmen (Rotating Frame) ist die Polarisation über die Einhüllende $\bar{p}(t)$ bestimmt:

$$\bar{p}(t) = p_{01}(t) \cdot e^{i\omega_0 t} \quad (3.66)$$

Während $\bar{p}(t)$ in Abwesenheit eines elektrischen Felds keine Rotationsfrequenz aufweist, rotiert diese während der Wechselwirkung mit einem resonanten elektrischen Feld $E(t) = E_0(t)(e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t})$ mit der Rabi-Frequenz [Hau98]

$$\omega_R(t) = \frac{\mu_{01} \cdot \epsilon \mathbf{E}_0(t)}{\hbar}. \quad (3.67)$$

²Da für die Dichtematrix gilt: $\rho = |\psi\rangle\langle\psi|$ gilt, ist $\frac{d\rho}{dt} = \frac{d|\psi\rangle}{dt}\langle\psi| + |\psi\rangle\frac{d\langle\psi|}{dt} = \frac{i}{\hbar} \times (H\rho - \rho H)$

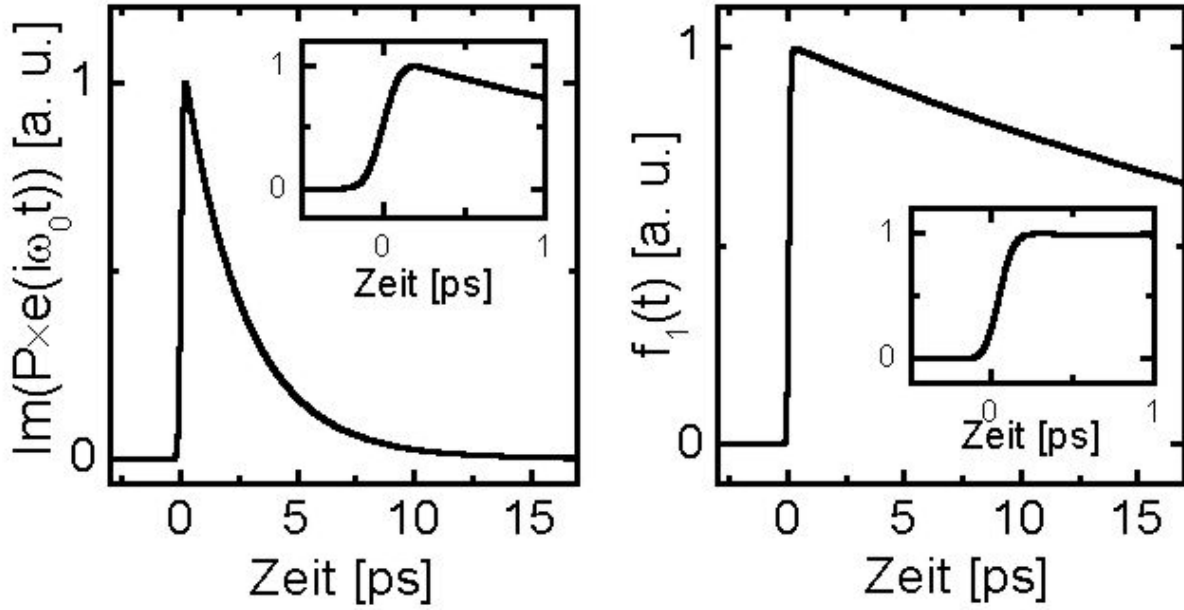


Abbildung 3.15: Polarisations- und Besetzungsdynamik eines Zweiniveausystems nach resonanter optischer Anregung. Die Dephasierungszeit T_2 der Polarisation wurde mit 3 ps, die Lebensdauer der Ladungsträger (Relaxationszeit) mit $T_1 = 50$ ps angenommen. (Insets) Entwicklung der Polarisationsdynamik und der Besetzung während optischer Wechselwirkung. Die Anstiegszeit ist durch die Wechselwirkungszeit mit dem optischen Lichtimpuls bestimmt. Für den optischen Lichtimpuls wurde ein gaußförmiger Puls mit einer Halbwertszeit von 200 fs angenommen.

Der Zerfall der Kohärenz (Dephasierung) sowie die Ladungsträgerrelaxation wird durch einen phänomenologische Zerfallsansatz mit Dephasierungsrate γ und Rekombinationsrate Γ beschrieben. Die Zerfallszeiten sind: $T_1 = \frac{1}{\Gamma}$ und $T_2 = \frac{1}{\gamma}$. Werden die Zerfallskonstanten als zeitlich konstant angenommen gilt [Muk95]:

$$\gamma = \frac{\Gamma}{2} + \hat{\gamma} \leftrightarrow \frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{\hat{T}_2} \quad (3.68)$$

Da Prozesse existieren, die die Kohärenz zerstören, gleichzeitig aber die Besetzung nicht beeinflussen, ist die Dephasierungszeit $T_2 \leq 2T_1$. $\hat{T}_2 = 1/\hat{\gamma}$ wird in der Literatur oftmals als „pure dephasing“ ³ bezeichnet.

Die Dynamik der Polarisations Einhüllenden $\bar{p}(t)$ und der Besetzung $n_1(t)$ ist in Abb. 3.15 in der „Rotierenden Wellennäherung“ dargestellt⁴. Sowohl die Polarisation als auch die Besetzung zeigen nach anfänglichem Anstieg aufgrund der optischen Anregung einen exponentiellen Abfall mit Zeitkonstante T_2 des Polarisationszerfalls (respektive T_1 für die Besetzung). Die Anstiegszeit ist über die Zeitdauer der Wechselwirkung gegeben (Abb. 3.15 inset). Dieser exponentielle Zerfall der Polarisation wird in der Literatur oft auch als freier Induktionszerfall beschrieben [Muk95].

³pure dephasing: reine Dephasierung

⁴Für das E-Feld gilt: $E(t) \propto e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}$. In der rotierenden Wellennäherung (RWA) wird nur die Komponente des E-Felds berücksichtigt, dessen Frequenz im rotierenden Rahmen nahe der Resonanzfrequenz ist (für p_{01} ist das $\omega - \omega_0 \ll \omega_0$)

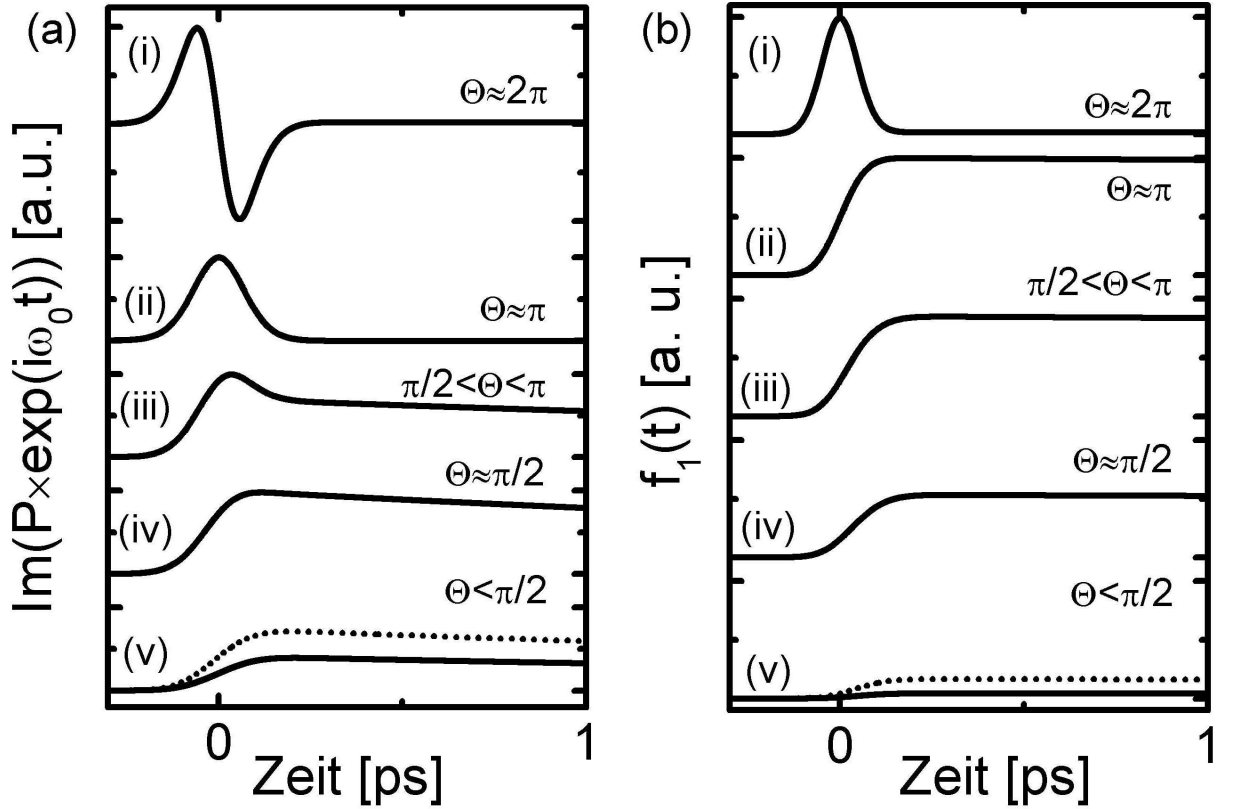


Abbildung 3.16: Einfluss der eingestrahlten Impuls-Feldstärke auf die Polarisationsdynamik eines Zweiniveausystems. Es wurde ein resonanter Impuls mit gaußförmiger Einhüllender und Dauer von 200 fs angenommen. Dargestellt ist die Polarisationsdynamik (a) und die Besetzung des angeregten Zustandes (b) während und kurz nach der Wechselwirkung. Das Auftreten von Rabi-Oszillationen ist klar sichtbar.

Einfluss der Impulsfläche

Für die Dynamik des Systems von wichtiger Bedeutung ist neben der Rabifrequenz $\omega_R(t)$ die Impulsfläche Θ . Sie bestimmen wesentlich die Polarisations- und Besetzungsdynamik während der optischen Wechselwirkung und legen so die Polarisations- und Besetzungsamplitude nach Ende der Wechselwirkung fest.

Die Impulsfläche Θ für eine zeitlich mit der Trägerfrequenz ω_0 oszillierende elektromagnetische Welle ist über die Rabifrequenz $\omega_R(t)$ gegeben durch:

$$\Theta = \int \omega_R(t) dt = \frac{\mu_{01} \cdot \epsilon}{\hbar} \int E_0(t) dt \quad (3.69)$$

wobei ϵ die Polarisationsrichtung und die Einhüllende des elektrischen Felds $E_0(t)$ die Zeitstruktur des Impulses wiedergibt.

Die Impulsfläche Θ gibt ein direktes Maß für den Grad der Rotation und damit für die Amplituden des Systems nach Ende der Wechselwirkung. Zur näheren Erläuterung dieser Abhängigkeit sind in Abb. 3.16 einige Spezialfälle bei resonanter Wechselwirkung ($\omega = \omega_0$) dargestellt:

Für sehr kleine Impulsflächen $\Theta \ll 1$ ist die Einhüllende der Polarisation $\bar{p}(t)$ imaginär und

proportional zur Impulsfläche $p_{01}(\Theta) \propto \Theta$, während sich die Besetzung nur wenig ändert (Abb. 3.16(v)).

Beschreibt Θ in Analogie zur Elektronenspinresonanz (ESR) einen $\pi/2$ -Puls, so erreicht die Polarisation am Ende der Wechselwirkung den Maximalwert, die Besetzungsdifferenz ($\Delta n = n_1 - n_0$) ist Null ($\Delta n = 0$) (Abb. 3.16(iv)).

Für $\frac{\pi}{2} \leq \Theta \leq \pi$ überschreitet die Polarisation das Maximum $p_{01} = 0.5$ und nimmt während der Wechselwirkung wieder ab (Abb. 3.16(iii)).

Im Falle eines π -Pulses ($\Theta = \pi$) liegt eine komplette Besetzungsinversion vor ($\Delta n = 1$) und die Polarisation ist nach Wechselwirkung wieder im Grundzustand (Abb. 3.16(ii)).

Ein 2π -Puls zeichnet sich durch eine Rückkehr in den Grundzustand nach Beendigung der Wechselwirkung aus (Abb. 3.16(i)). Diese Rotation wird auch als Rabi-Flop bezeichnet. Er konnte vor Kurzem erstmals in einzelnen Quantenpunkten nachgewiesen werden [Sti01, Kam01].

3.5.2 Wechselwirkungen mit der Umgebung (Halbleiter Blochgleichungen)

Das im vorigen Abschnitt beschriebene Modell geht von isolierten Zweiniveausystemen aus, eine Wechselwirkung zwischen elektronischen Zuständen wird nicht berücksichtigt. Gerade in Halbleitern aber haben Vielteilcheneffekte entscheidenden Einfluss auf die optischen und elektronischen Eigenschaften. Wechselwirkungen unterschiedlicher Ladungsträger mit der Umgebung können nicht vernachlässigt werden [Hau98, Sha92]. Zum quantitativen Verständnis der Dynamik wird daher ein umfangreiches theoretisches Modell benötigt, dass neben den Kohärenz die spezifischen Eigenschaften der Halbleiter berücksichtigt. Die Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung auf die Dynamik führt zu den „Halbleiter Blochgleichungen“ (SBE⁵) (vgl. z. B. [Hau98]).

Für räumlich homogene Systeme erscheint eine \mathbf{k} -Raum Darstellung angebracht. Diese wurde bereits vielfach dargestellt und findet sich z. B. in [Hau98, Sha92, Lin88b] wieder. In räumlich inhomogenen Systemen führt Unordnung zu lokalisierten Wellenfunktionen. Die Betrachtung im \mathbf{k} -Raum kann zwar immer noch erfolgen [Ben91], eine Darstellung im Realraum erscheint aber aufgrund der expliziten Ortsabhängigkeit oftmals geeigneter.

Für die Betrachtung wird ein einzelner Quantenfilm mit Zwei-Band- und effektiver Massenäherung gewählt. Die Ein-Elektronen-Envelope-Wellenfunktion wird faktorisiert:

$$\chi(\mathbf{r}_a) = \xi_{a,nz_a}(z_a)\varphi(\mathbf{r}_{\parallel a}). \quad (3.70)$$

Dabei geben nz_a die unterschiedlichen Subbandquantenzahlen für $a = e, h$ an und $\mathbf{r}_{\parallel a} = (x_a, y_a)$. Das Coulombpotential führt zu einer Wechselwirkung unterschiedlicher Ladungsträger. Im Realraum ist dies gegeben durch:

$$V(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \cdot \frac{\rho(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (3.71)$$

Hierbei beschreibt ϵ_0 die Vakuumdielektrizitätskonstante, ϵ_r die Dielektrizitätskonstante des Mediums und ρ die Ladungsträgerdichte. Es ist zu berücksichtigen, dass sowohl Elektronen als auch Löcher miteinander wechselwirken. D.h. sowohl die Elektron-Elektron-Wechselwirkung (e-e), als auch Loch-Loch- (h-h) und Elektron-Loch-(e-h) Wechselwirkung

⁵SBE: semiconductor Bloch equations

beeinflussen das System.

Berücksichtigt man neben dem Coulombpotential auch den Einfluss der Unordnung, lässt sich der Hamiltonoperator in 2. Quantisierung beschreiben durch [Blu89, Run02]:

$$H = H^0 + H^{int}(t) + H^{Coul}(t)$$

mit [Gla02]

$$\begin{aligned} H^0 &= H^{free} + H^{disorder} \\ &= \left(\sum_n \epsilon_{e,n} a_n^\dagger a_n + \sum_l \epsilon_{h,l} b_l^\dagger b_l \right) + \left(\sum_{n,n'} W_{e,n',n} a_{n'}^\dagger a_n + \sum_{l,l'} W_{h,l',l} b_{l'}^\dagger b_l \right) \end{aligned} \quad (3.72)$$

$$H^{int}(t) = \sum_{n,l} \mu_{n,l} E^{(+)}(t) a_n^\dagger b_l^\dagger + \sum_{n,l} \mu_{n,l}^* E^{(-)}(t) a_n b_l \quad (3.73)$$

$$\begin{aligned} H^{Coul}(t) &= + \frac{1}{2} \sum_{n,n',n'',n'''} V_{n,n',n'',n'''}^{e-e} a_n^\dagger a_{n'}^\dagger a_{n''} a_{n'''} + \frac{1}{2} \sum_{l,l',l'',l'''} V_{l,l',l'',l'''}^{h-h} b_l^\dagger b_{l'}^\dagger b_{l''} b_{l'''} \\ &\quad - \sum_{l,n,l',n'} V_{l,n,l',n'}^{e-h} a_n^\dagger b_l^\dagger b_{l'} a_{n'} \\ &= H^{ee} + H^{hh} + H^{eh}. \end{aligned} \quad (3.74)$$

Dabei ist H^0 der ungestörte Hamiltonoperator für Elektronen und Löcher unter Berücksichtigung der Unordnung. H^{int} beschreibt die Wechselwirkung des betrachteten Systems mit einem einfallenden Lichtfeld E und H^{Coul} die Wechselwirkung über das Coulombpotential. Der Coulombwechselwirkungshamiltonian umfasst die Elektron-Elektron-Wechselwirkung (e-e), Loch-Loch-Wechselwirkung (h-h) und Elektron-Loch-Wechselwirkung (e-h). n (n', n'', n''') sind die Quantenzahlen unterschiedlicher Eigenzustände von H^{free} für Elektronen, l (l', \dots) für Löcher mit den zugehörigen zweidimensionalen Wellenfunktionen φ_n für Elektronen bzw. ψ_l für Löcher in geeigneter Basis. Die Erzeuger (bzw. Vernichtungsoperatoren) sind mit a^\dagger (a) für Elektronen und b^\dagger (b) für Löcher gegeben.

Die Matrixelemente für das Unordnungspotential sind durch

$$W_{a,m,m'} = \langle m' | \int dz \xi_a(z_a) W(\mathbf{r}_{\parallel a}) | m \rangle$$

über die Basisfunktionen $|m\rangle = |\varphi_m\rangle, |\psi_m\rangle$ für Elektronen bzw. Löcher bestimmt. In Dipolnäherung bei Einfall eines klassischen mit der Frequenz ω oszillierenden Lichtfelds

$$E(\mathbf{r}, t) = \epsilon E(\mathbf{r}) (E^{(+)}(t) + E^{(-)}(t)) = \epsilon E(\mathbf{r}) E_0(t) (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$$

kann das Dipolmatrixelement $\mu_{n,l}$ durch

$$\mu_{n,l} = \langle u_h | -e \mathbf{r} \epsilon | u_e \rangle \langle \xi_{h,nz_h} \psi_l | E(\mathbf{r}) | \xi_{e,nz_e} \varphi_n \rangle \quad (3.75)$$

dargestellt werden. Die Coulombmatrixelemente bestimmen sich aus effektiven, entlang der Wachstumsrichtung des Quantenfilms gemittelten Coulombpotentialen:

$$\begin{aligned} V_{n,n',n'',n'''}^{e-e} &= \frac{1}{L_z} \int \varphi_n^*(\mathbf{r}) \varphi_{n'}^*(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \varphi_{n''}(\mathbf{r}') \varphi_{n'''}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \\ V_{l,l',l'',l'''}^{h-h} &= \frac{1}{L_z} \int \psi_l^*(\mathbf{r}) \psi_{l'}^*(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \psi_{l''}(\mathbf{r}') \psi_{l'''}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \\ V_{l,n,l',n'}^{e-h} &= \frac{1}{L_z} \int \psi_l^*(\mathbf{r}') \varphi_n^*(\mathbf{r}) V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \psi_{l'}(\mathbf{r}') \varphi_{n'}(\mathbf{r}) dz dz'. \end{aligned} \quad (3.76)$$

Unter Nutzung der Heisenberg-Gleichung und unter Berücksichtigung der Vertauschungsrelationen für fermionische Erzeuger-/Vernichteroperatoren [Hak89] lassen sich daraus die Bewegungsgleichungen der Besetzungsdichten $f_{n',n}^e = \langle a_{n'}^\dagger a_n \rangle$, der Elektronen $f_{l',l}^h = \langle b_{l'}^\dagger b_l \rangle$ der Löcher und der Polarisationen $p_{l,n} = \langle b_l a_n \rangle$ im Realraum ableiten. Diese sogenannten Halbleiterblochgleichungen im Realraum ergeben sich zu [Gla02]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} f_{n',n}^e &= \frac{i}{\hbar} \sum_{n''} \left(\mathcal{E}_{n'',n'}^e f_{n'',n}^e - \mathcal{E}_{n,n''}^e f_{n',n''}^e \right) + \frac{i}{\hbar} \sum_{l''} \left(\mathcal{U}_{l'',n'}^* p_{l'',n} - \mathcal{U}_{l'',n} p_{l'',n'}^* \right) - \Gamma f_{n',n}^e \\ \frac{\partial}{\partial t} p_{l,n} &= -\frac{i}{\hbar} \left\{ \sum_{l''} \mathcal{E}_{l,l''}^h p_{l'',n} + \sum_{n''} \mathcal{E}_{n,n''}^e p_{l,n''} \right\} \\ &\quad - \frac{i}{\hbar} \left\{ \sum_{l'} \mathcal{U}_{l',n} (\delta_{l',l} - f_{l',l}^h) - \sum_{n'} \mathcal{U}_{l,n'} f_{n',n}^e \right\} - \gamma p_{l,n} \\ \frac{\partial}{\partial t} f_{l',l}^h &= \frac{i}{\hbar} \sum_{l''} \left(\mathcal{E}_{l'',l'}^h f_{l'',l}^h - \mathcal{E}_{l,l''}^h f_{l',l''}^h \right) + \frac{i}{\hbar} \sum_{n''} \left(\mathcal{U}_{n'',l'}^* p_{n'',l''} - \mathcal{U}_{n'',l''} p_{n'',l'}^* \right) - \Gamma f_{l',l}^h \end{aligned} \quad (3.77)$$

mit den renormierten Energien:

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{n,n''}^e &= \epsilon_{e,n} \delta_{n,n''} + W_{n'',n}^e - \sum_{l^4,l''} V_{l^4,n,l'',n''} f_{l^4,l''}^h + \sum_{n^4,n'''} \left(V_{n^4,n,n'',n'''} - V_{n,n^4,n'',n'''} \right) f_{n^4,n'''}^e \\ \mathcal{E}_{l,l''}^h &= \epsilon_{h,l} \delta_{l,l''} + W_{l'',l}^h - \sum_{n^4,n''} V_{l,n^4,l'',n''} f_{n^4,n''}^e + \sum_{l^4,l'''} \left(V_{l^4,l,l'',l'''} - V_{l,l^4,l'',l'''} \right) f_{l^4,l'''}^h \end{aligned}$$

und Feldern:

$$\mathcal{U}_{l,n} = -\mu_{l,n} E_{l,n}^{(+)} - \sum_{l'',n''} V_{l,n,l'',n''} p_{l'',n''}$$

Während die Energierenormierung, die nur von den Besetzungsdichten der wechselwirkenden Zustände abhängig ist, zu Änderungen der Bandkante führen, sind die Renormierungen der Felder abhängig von den Polarisationen und verantwortlich für exzitonische Effekte.

Bei der Ableitung der obigen Gleichung stößt man auf das seit Jahren intensiv diskutierte Problem, dass die Coulomb-Wechselwirkung dazu führt, dass die Bewegungsgleichungen Viereroperatoren vom Typ $\langle a_1 a_2 a_3 a_4 \rangle$ enthält, deren Zeitentwicklung wiederum durch Lösung der Bewegungsgleichungen für Viereroperatoren, gegeben ist. Diese beinhalten dann Operatoren noch höherer Ordnung [Hau98]. Das führt somit zu einer nicht geschlossenen Hierarchie von Bewegungsgleichungen. Dieses Problem wird umgangen, in dem man näherungsweise die Viereroperatoren als Produkt von Zweieroperatoren beschreibt (Hartree-Fock-Näherung):

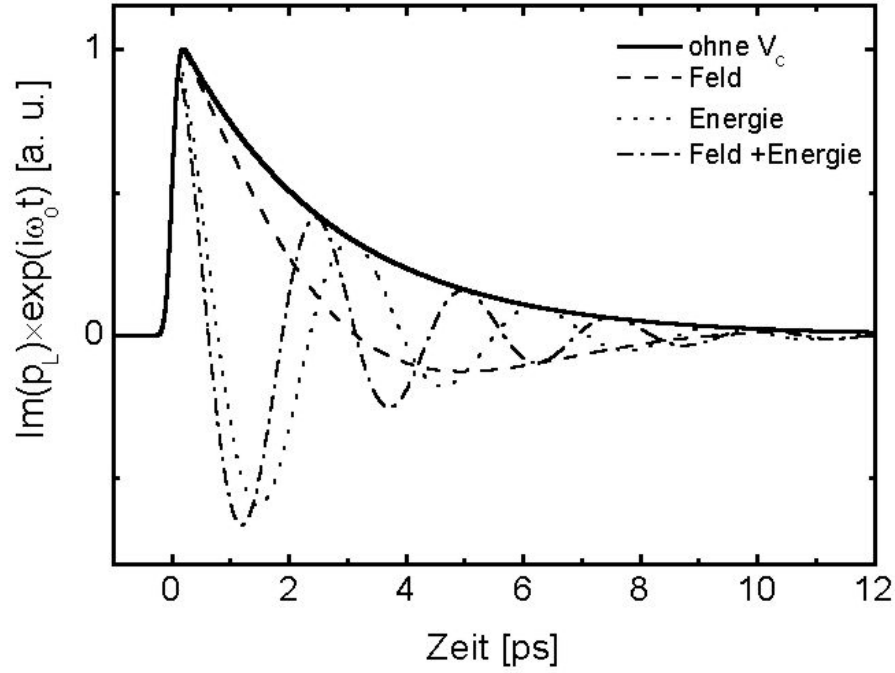


Abbildung 3.17: Einfluss der unterschiedlichen Komponenten zur Kopplung elektronischer Zustände auf die Polarisationsdynamik eines Quantenpunkt-Zweiniveausystems. Ohne Wechselwirkung oszilliert die Polarisation bei ihrer Eigenfrequenz ω_0 . Die Berücksichtigung der Feldrenormierungen $\mathcal{U}_{l,n}$ (---), der Energienormierungen $\mathcal{E}_{n,n''}^e$ (····), sowie beider Kopplungen führen zu einer Renormierung der Oszillationsfrequenz, nicht jedoch zu einer Erhöhung der Dephasierungsrate.

$\langle a_i^\dagger a_j^\dagger a_k a_l \rangle \Rightarrow -\langle a_i^\dagger a_k \rangle \langle a_j^\dagger a_l \rangle + \langle a_i^\dagger a_l \rangle \langle a_j^\dagger a_k \rangle$ [Hau98, Lin88b]. Den Zweieroperatoren lassen sich Besetzungen und Polarisierungen zuordnen, was zu dem in Gln. 3.77 dargestellten geschlossenen Gleichungssystem führt. Diese Näherung berücksichtigt ausschließlich Einteilchenanregungen und deren kohärente Wechselwirkung durch das Coulombpotential und mit dem externen Lichtfeld. Mehrteilchenanregung, sowie phasenzerstörende Prozesse bleiben unberücksichtigt; sie können in diesem Modell mit einem zusätzlichen Beitrag zur phänomenologischen Zerfallskonstanten beschrieben werden.

Die Halbleiterblochgleichungen beschreiben ein System nichtlinear-gekoppelter Differentialgleichungen aller Zustände mit sich zeitlich ändernden Kopplungen. Sie unterscheiden sich von den optischen Blochgleichungen wesentlich durch die Einbeziehung der Coulomb-Wechselwirkung⁶. Der Einfluss der Renormierungen der Energie und Felder wird am Beispiel zweier gekoppelten Zweiniveausysteme deutlich, wovon das eine den Quantenpunkt beschreibt. Abb. 3.17 zeigt die Polarisationsdynamik mit und ohne Renormierungen. Sowohl die Energienormierung, als auch die Renormierung der Felder führen zu einer zusätzlichen Oszillation der Einhüllenden. Die Oszillationsfrequenz ist nicht mehr durch ω_0 gegeben, sondern verschiebt sich um $\delta\omega$ in Abhängigkeit der Kopplungsstärken. Die Zeitdauer der Existenz der Polarisation ist allerdings davon unbeeinflusst; es wird in dem gekoppelten Zweiniveausystem in Hartree-Fock-Näherung **keine** erhöhte Dephasierung infolge der Renormierung

⁶existiert keine Wechselwirkung zwischen den Zuständen ($V \equiv 0$), so gehen die SBE in die optischen Blochgleichungen über

beobachtet.

3.6 Wechselwirkung des Anregeimpuls - Auswirkung auf Dynamik und das detektierte Spektrum

In den vorigen Abschnitten wurde der Zusammenhang zwischen Dynamik der Polarisation $p(t)$, der Absorption $\alpha(\omega)$, dem Brechungsindex $n(\omega)$ und dem linearen Reflexionsspektrum dargestellt. Dabei wurde die Wechselwirkung mit einem einzelnen Lichtimpuls betrachtet. Die Wechselwirkung mit einem zweiten Impuls führt zu Änderungen der Besetzung elektronischer Zustände, kann aber auch die Polarisationsdynamik verändern. Beides beeinflusst das Reflexionsspektrum $R(\omega)$. Die Besetzung eines Zustands führt zu dessen Ausbleichen. Die Absorption der Resonanz wird vermindert. Eine Änderung der Dynamik der Polarisation dagegen führt zu Änderungen der Form der Absorptionslinie. Die theoretische Beschreibung ist ebenfalls durch die Halbleiterblochgleichungen gegeben.

Der Einfluß eines zweiten Impulses auf die Polarisationsdynamik und das Reflexionsspektrum soll im Folgenden an dem vereinfachenden Fall zweier gekoppelter Zweiniveausysteme beschrieben werden. Das eine (Energie 1.6 eV) beschreibt den Quantenpunkt und weist eine lange Dephasierungszeit T_2 von 3 ps auf, die zu einer Linienbreite von $\Delta E_{FWHM} = 2\hbar/T_2 = 438 \mu\text{eV}$ führt. Die Anregung dieses Zustands erfolgt resonant durch einen kurzen Abtastimpuls (Photonenergie 1.6 eV, Dauer 300 fs).

Das zweite Zwei-Niveausystem ist zu höheren Energien verschoben und hat eine kurze Dephasierungszeit von 100 fs. Ein zweiter Anregimpuls (Zeitdauer: 300 fs) wird resonant zu dem zweiten Zwei-Niveausystem eingestrahlt und erzeugt eine Nichtgleichgewichts-Ladungsträgerbesetzung in diesem.

Aus der Polarisationsdynamik $\mathbf{P}_{QD}(t)$ des Quantenpunktes werden die Reflexionsspektren des Abtastimpulses und deren Änderung durch den Anreger berechnet. Dabei wird angenommen, dass das Reflexionsspektrum durch den Imaginärteil der QD-Polarisation bestimmt wird:

$$R(\omega) = |\tilde{E}_R(\omega)|^2 + a\tilde{E}_R(\omega) \cdot \text{Im}(\tilde{P}_{QD}(\omega)).$$

Drei unterschiedliche Fälle sollen näher betrachtet werden: Ladungsträgerrelaxation, Energienormierung und anregungsinduziertes Dephasieren. Deren Auswirkungen sind in Abb. 3.18 näher dargestellt.

Zunächst wird Ladungsträgerrelaxation als einzige Wechselwirkung zugelassen. Durch den Anregimpuls werden angeregte Ladungsträger im hochenergetischen Zweiniveausystem erzeugt. Diese relaxieren in das Quantenpunktzweiniveausystem. Eine Besetzung des Quantenpunktzustands erfolgt. Die Besetzung führt zu einer Verminderung der Besetzungsdifferenz $\Delta f(t) = f_0(t) - f_1(t)$. Unter Annahme einer Relaxationszeit T_R kann die Zeitentwicklung einer derartigen Besetzung des Quantenpunktzustands f_1 durch

$$f_1(t) = 1 - f_0(t) = \text{const} \cdot E_{0,Pu}(t) \otimes (\Phi(t) \cdot (1 - e^{-t/T_R})e^{-t/T_1}) \quad (3.78)$$

unter der Berücksichtigung der Faltung mit der Einhüllenden des Anregfelds $E_{0,Pu}(t)$ beschrieben werden (Abb. 3.18(b)(inset)). Dabei ist T_1 die Lebensdauer angeregter Ladungsträger im Quantenpunktzustand.

Eine Änderung der Besetzungsdifferenz Δf führt nach Gln. 3.77 zu einer verminderten Absorption und dementsprechend verminderten Polarisationsamplitude P_{max} . Dabei gilt für

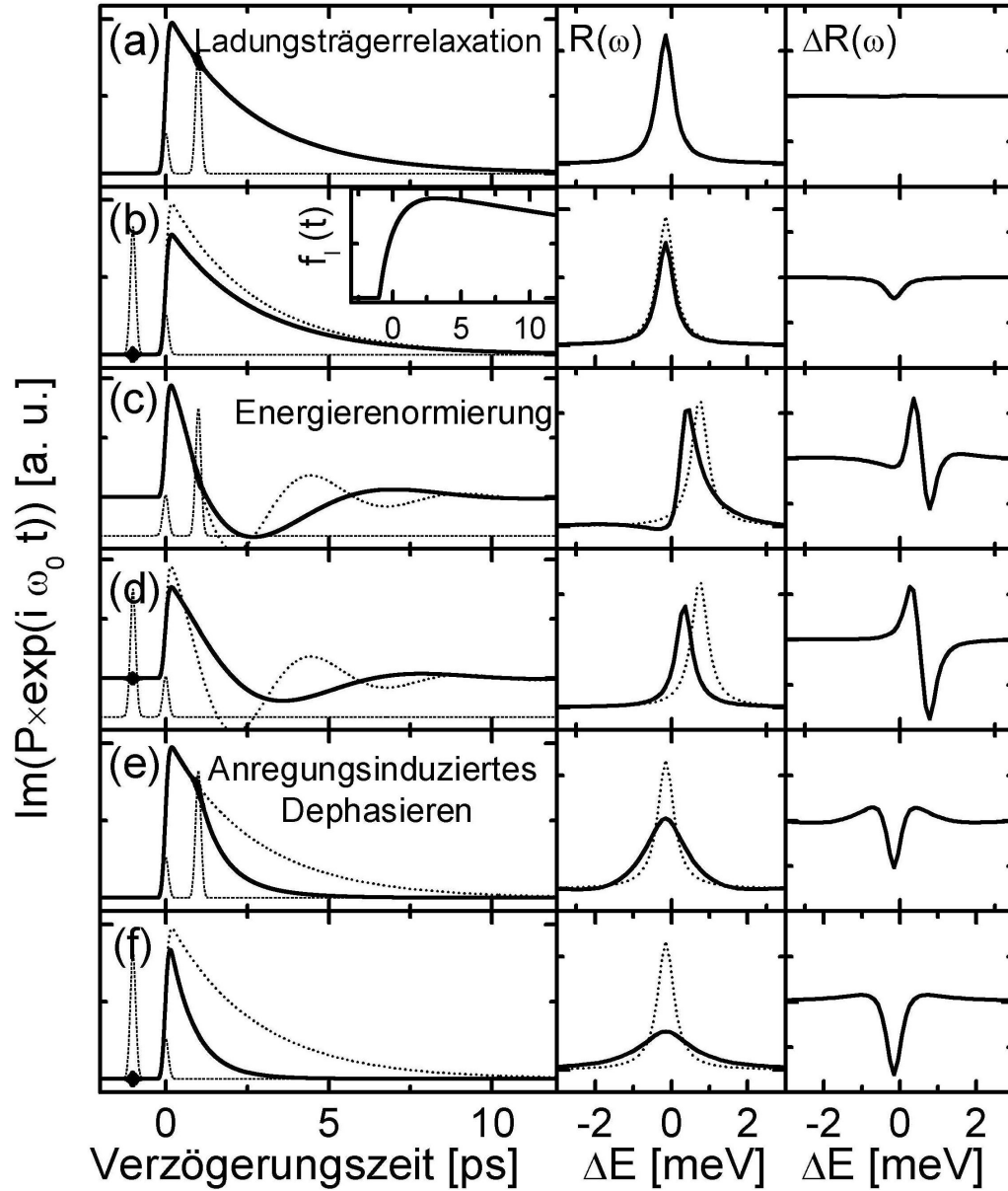


Abbildung 3.18: Einfluß eines nichtresonanten hochenergetischen Anregeimpuls auf die Polarisationsdynamik (links), Reflektionsspektrum (mitte) und Reflektionsänderungsspektrum $\Delta R(\omega)$ (rechts) eines Quantenpunkt-Zweiniveausystems bei einer Verzögerungszeit von $\Delta t \pm 1$ ps. (\cdots) Freier Abtastimpulsinduzierter Induktionszerfall der Polarisation eines Zweiniveausystems ($T_2 = 3$ ps). (a),(b) **Ladungsträgerrelaxation** ändert die Besetzungsdifferenz Δf ($f_1(t)$ (inset)). Eine nicht-verschwindende Besetzung vermindert die Polarisationsamplitude ausschließlich für $\Delta t > 0$ und führt zu einer lorentzförmigen Reflexionsänderung. (c),(d) **Energienormierungen** verschieben die Quantenpunkt-Resonanzenergie. Eine Verschiebung des Reflexionsspektrum wird beobachtet. Ein dispersives ΔR -Spektrum wird bestimmt. (e),(f) Ein **Anregungsinduziertes Dephasieren** vermindert die Dephasierungszeit der Quantenpunktpolarisation. Die Dephasierungszeit vermindert sich nach Absorption des Anregeimpuls von T_2 auf T_{EID} . Ein verbreitertes Reflexionsspektrum wird errechnet. Dies ist gleichbedeutend mit spektralen Oszillationen für $\Delta R(\omega)$.

niedrige Abtastimpulsintensitäten ($\Theta \ll \pi/2$): $P_{max} \propto \Delta f$.

Abb. 3.18(a,b) zeigt den Einfluß der Ladungsträgerrelaxation auf die Polarisationsdynamik und das Reflexionsspektrum für negative und positive Verzögerungszeiten. Für negative Verzögerungszeiten $\Delta t < 0$ (Abb. 3.18(a)) werden Elektronen-Lochpaare erst nach der Absorption des Abtastimpuls generiert. Die Polarisation der Quantenpunktresonanz wird dadurch nicht beeinflusst. Für positive Verzögerungszeiten $\Delta t > 0$ existiert zum Zeitpunkt der Wechselwirkung mit dem Abtastimpuls eine nichtverschwindende Besetzung f_1 des Quantenpunktzustands, die den Absorptionskoeffizienten α vermindert. Die Maximalamplitude der Polarisation P_{max} wird dadurch erniedrigt; die Dephasierungszeit T_2 bleibt unbeeinflusst. Das Reflexionsspektrum $R(\omega)$ ändert sich nur zu positiven Verzögerungszeiten (Abb. 3.18(a),(b)(mitte)). Ist $\Delta t > 0$ wird die Amplitude von $R(\omega)$ aufgrund der veränderten Besetzungsdifferenz erniedrigt. Die Linienform und die Linienbreite des Reflexionsspektrum ändern sich nicht. Daher kann ein nichtverschwindendes Spektrum der Reflexionsänderung $\Delta R(\omega, \Delta t)$ ausschließlich für positive Verzögerungszeiten $\Delta t > 0$ bestimmt werden. Das Spektrum ist lorentzförmig und besitzt eine Linienbreite, die durch die Dephasierungszeit T_2 der Quantenpunkt-polarisation bestimmt ist ((a,b), Abb. 3.19(a)).

Als zweites werden Renormierungen der Oszillationsfrequenz des Quantenpunkt-Zweiniveausystems (vgl. Abs. 3.5.2) betrachtet. Renormierungen treten auf bei Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen unterschiedlichen Zuständen. Die aus den Renormierung der Energien und Felder resultierende Energieverschiebung der Resonanz ist abhängig von der Kopplungsstärke, aber auch von den Besetzungsdichten und Polarisierungen der Umgebung (Abb. 3.18(c,d), Gln. 3.77). Die Renormierungen ändern die Dephasierungszeit allerdings nicht. Folglich führen die durch den Anregeimpuls erzeugten Elektronen und Löcher zu einer Verschiebung der Resonanzenergie und dadurch zu einer energetischen Verschiebung des Reflexionsspektrums zu positiven und negativen Verzögerungszeiten. Die Form und Amplitude von $R(\omega)$ bleibt aber erhalten (Abb. 3.18(b),(c)(mitte)).

Aufgrund der anregeimpulsinduzierte Verschiebung der Resonanzenergie weist das Spektrum der Reflexionsänderung eine dispersive Form auf. Es besitzt damit eine Form, die ähnlich zum Realteil des Brechungsindex ist ((c,d)(links)). Allerdings ist dieses im Unterschied zum Realteil des Brechungsindex nicht auf die Resonanzenergie zentriert, sondern gegenüber dem Absorptionsspektrum energetisch verschoben. Ein nichtverschwindendes ΔR -Spektrum kann zu positiven und negativen Verzögerungszeiten beobachtet werden (Abb. 3.19(b)). Ist $\Delta t < 0$ existieren spektrale Oszillationen auf dem ΔR -Spektrum. Sie besitzen eine anti-symmetrische Struktur, das zentriert ist auf das detektierte dispersive Signal.

Optisch angeregte Ladungsträger in der Umgebung können neben einer Energieverschiebung auch zu einer erhöhten Dephasierungsrate γ der Polarisation führen. Die Ursache hierfür liegt in Streuprozessen zwischen angeregten Ladungsträger und der Quantenpunkt-Polarisation. Der freie Induktionszerfall wird gestört. Die Dephasierungsrate γ ist abhängig von der Besetzungsdichte der Umgebung $f_U(t)$ [Wan93, Lin88b]. Sie kann im Limit niedriger Besetzungsdichten näherungsweise durch [Wan93, Hau84, Lin92]

$$\frac{1}{T_{deph}(f^{(U)})} = \gamma(f^{(U)}) \simeq \gamma_0 + \gamma_{EID} f_U \quad (3.79)$$

angegeben werden. Ein derartiges anregungsinduziertes Dephasieren besitzt starken Einfluß auf die Polarisationsdynamik (vgl. Abb. 3.18(e,f)). Die Wechselwirkung des Anregeimpuls mit der Umgebung des Zweiniveausystems erniedrigt die Dephasierungszeit von $T_{deph} = T_2$

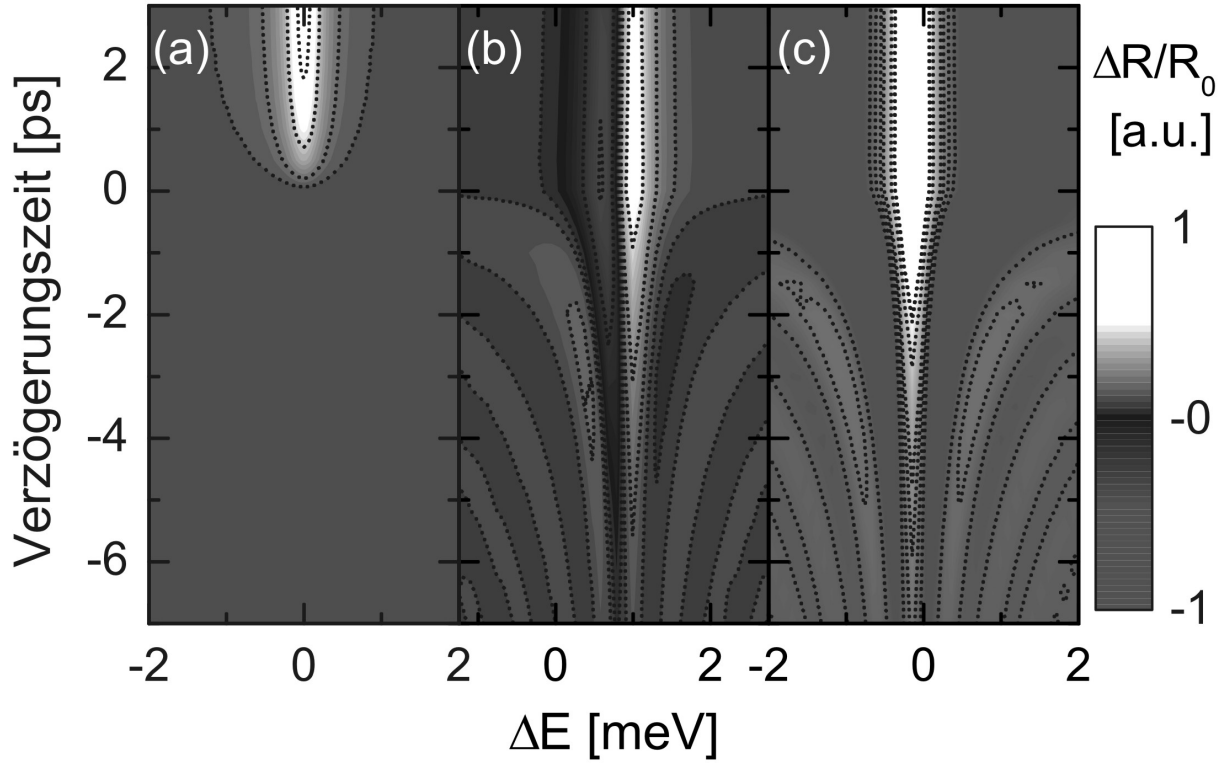


Abbildung 3.19: Spektral aufgelöste anregeimpulsinduzierte Reflektivitätsänderung $\Delta R(\Delta E, \Delta t)/R$ des oben beschriebenen Vierniveausystems in Abhängigkeit der Verzögerungszeit. Die Polarisationsdephasierungszeit beträgt $T_2 = 3ps$. (a) Ladungsträgerrelaxation in das Zweiniveausystem führt zu einer nichtverschwindenden Reflektivitätsänderung ausschließlich zu positiven Zeiten. Das Spektrum ist lorentzförmig und auf die Resonanz zentriert. Eine Linienverbreiterung wird nicht detektiert. (b) Anregeimpulsinduzierte Energienormierungen führen zu einer Verschiebung der Resonanz. Das Spektrum der Reflektivitätsänderung besitzt eine dispersive Form und ist sowohl für negative als auch positive Verzögerungszeiten sichtbar. Für negative Verzögerungszeiten werden antisymmetrische spektrale Oszillationen deutlich. (c) Anregungsinduzierte Dephasierung führt ebenfalls zu einem nichtverschwindenden ΔR -Spektrum zu positiven und negativen Verzögerungszeiten. Die detektierte Linienform ist lorentzförmig. Für negative Verzögerungszeiten werden spektrale Oszillationen sichtbar. Die Oszillationen sind symmetrisch auf die lorentzförmige ΔR -Linie zentriert.

auf $T_{deph} = T_{EID}$. Die Linienbreite der Quantenpunktresonanz im Reflexionsspektrum ist nicht mehr durch die homogene Linienbreite mit der Dephasierungszeit T_2 bestimmt. Vielmehr führt die Verminderung der Dephasierungszeit auf T_{EID} zu einer Linienverbreiterung des Reflexionsspektrums der Resonanz (Abb. 3.18(e),(f) (Mitte)). Sie ändert jedoch nicht die Fläche unter dem Reflexionsspektrum.

Dies führt zu Oszillationen im Spektrum der Reflexionsänderung ($\Delta R(\omega)$) bei negativen Verzögerungszeiten ($\Delta t < 0$) (e,f). Die Oszillationen sind auf die Resonanzenergie zentriert und besitzen im Gegensatz zu Energierenormierungen eine symmetrische Struktur (Abb. 3.19(c)). Für positive Verzögerungszeiten wird ein nichtverschwindendes Signal detektiert. Es ergibt sich aus der Differenz zweier lorentzförmigen Resonanzen unterschiedlicher Breite. Das Signal existiert solange Ladungsträger der Umgebung die Polarisationsdynamik beeinflussen und die Dephasierung erhöhen. Die Detektion ist also maximal auf die Rekombinationslebensdauer angeregter Ladungsträger beschränkt.

3.7 Spektral integrierte und aufgelöste Detektion

Die große spektrale Bandbreite der in den Experimenten verwendeten Lichtimpulse ermöglicht nicht nur die Messung mit hoher Zeitauflösung, sondern auch gleichzeitig die Detektion der Spektren der Reflexionsänderung $\Delta R(\omega, \Delta t)$. Hierfür wird das von der Probe reflektierte Licht des breitbandigen Abtastimpulses mit dem dispersiven Medium eines Monochromator spektral aufgespalten und die Intensität des Reflexionsspektrums in Abhängigkeit der Wellenlänge detektiert.

Wie im vorigen Kapitel dargestellt kann sich das Spektrum der Reflexionsänderung aus anregungsimpulsinduzierten Änderungen der Zeitstruktur der Quantenpunktpolarisation und der Quantenpunktbesetzung zusammensetzen. Zur Bestimmung des physikalischen Hintergrunds ist eine Trennung zwischen Änderung der Zeitstruktur der Polarisation (Energierenormierung, Dephasierungszeitänderung) und Änderung der Besetzung notwendig. Eine Möglichkeit dazu bietet der Vergleich zwischen spektral integrierter und spektral aufgelöster fs-Anrege-Abtastspektroskopie. Dazu wird das Spektrum der Reflexionsänderung spektral aufgelöst detektiert und die unterschiedlichen Spektralkomponenten anschließend aufsummiert.

Es ergibt sich als spektral integrierte Reflexionsänderung [Sto92]:

$$\begin{aligned} \Delta R(\Delta t) &\simeq 2 \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \text{Re}(\tilde{E}_R^*(\omega) \{ [\tilde{P}_{QD}(\omega, \Delta t) - \tilde{P}_{QD,0}(\omega)] e^{i\Delta\phi} \}) d\omega \\ &\propto 2 \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \text{Re}(\bar{E}_R^*(t) \{ [\bar{P}_{QD}(t, \Delta t) - \bar{P}_{QD}(t)] e^{i\Delta\phi} \}) dt \end{aligned} \quad (3.80)$$

wobei $\bar{E}_R(t)$ die Einhüllende des elektrischen Felds bzw. $\bar{P}_{QD}(t)$ die der Polarisation beschreibt. Eine Änderung der Reflexionsänderung wird nur beobachtet, falls gleichzeitig $E_R(t) \neq 0$ und $[P_{QD}(t, \Delta t) - P_{QD,0}(t)] \neq 0$ ist. Dies ist nur möglich, falls bereits eine Wechselwirkung mit dem Anregeimpuls vorangegangen ist, d. h. nur für positive Verzögerungszeiten ($\Delta t > 0$). Nach Gln. 3.38 bzw. durch die Halbleiterblochgleichungen Gln. 3.77 führt eine Änderung der Besetzungsdifferenz Δf zu einer derartigen Änderung der Polarisation. Eine Änderung von Δf ändert die Amplitude von $R(\omega)$, nicht jedoch die Form und Linienbreite (Abb. 3.18). Folglich wird die Fläche unter dem Reflexionsspektrum

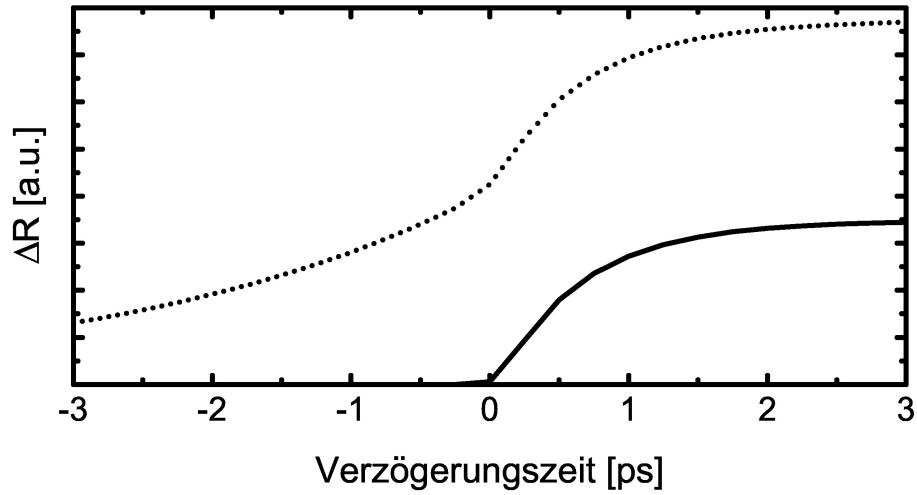


Abbildung 3.20: Vergleich zwischen spektral integriertem (···) und spektral aufgelöster (–) Detektion eines Quantenpunkts mit Ladungsträgerinduzierter Dephasierung und Relaxation in den Quantenpunkt. Spektral aufgelöster Detektion ist sensitiv auf Änderungen der Dynamik der Quantenpunktpolarisation und der Besetzung des Quantenpunktzweiniveausystems. Durch spektrale Integration verschwinden die Anteile, die die Quantenpunktpolarisation beeinflussen. Die spektral integrierte Reflexionsänderung ist auf Besetzungseffekte sensitiv.

verändert. Daher führt eine Änderung von Δf auch in spektral integrierter Detektion zu einer nichtverschwindenden Reflektivitätsänderung (Abb. 3.20).

Eine reine Änderung der Zeitstruktur der Polarisation hingegen ändert die Fläche unter dem Reflexionsspektrum nicht. Stattdessen wird das anregimpulsinduzierte Reflexionsspektrum spektral verbreitert oder energetisch verschoben (Abb. 3.18). Spektrale Oszillationen auf dem $\Delta R(\omega)$ -Spektrum werden beobachtet. Mit spektral aufgelöster Anrege-Abtast-Spektroskopie kann dieses Signal künstlich bis maximal auf die Polarisationsdephasierungszeit T_2 verlängert und detektiert werden (vgl. Abb. 3.20). Da die spektrale Fläche des Reflexionssignals jedoch erhalten bleibt, interferieren bei spektral integrierter Detektion die Komponenten destruktiv zu einem verschwindenden Signal [Dom87].

Dementsprechend ermöglicht die Kombination aus spektral aufgelöster und integrierter Anrege-Abtastspektroskopie eine Trennung zwischen Populationsdynamik und Polarisationsdynamik.

Die vorhergehenden Betrachtungen zeigen, dass Vielteilchenwechselwirkungen es ermöglichen mit nichtentarteter spektral aufgelöster Nahfeld-Anrege-Abtastspektroskopie die Polarisationsdynamik in einzelnen Quantenpunkten direkt zu beobachten. Allerdings ist eine genaue Kenntnis der Probengeometrie notwendig. Ohne die Kenntnis lässt sich **keine** eindeutige Interpretation des physikalischen Hintergrundes des experimentell detektierten Signals geben. So kann beispielsweise ein dispersiver Charakter von $\Delta R(\omega)$ aufgrund geeigneter Energienormierungen entstehen. Gleichzeitig kann aber auch die Ursache darin liegen, dass die Tiefe der untersuchten Struktur so gewählt ist, dass nicht der Imaginärteil, sondern der Realteil der Polarisation $\tilde{P}(\omega)$ detektiert wird. Dies führt ebenfalls zu einem dispersiven Charakter des Meßsignals. Umgekehrt kann man auch bei lorentz- oder gaußförmigen Meßsignalen nicht sofort auf den Imaginärteil der Polarisation als detektierte

Größe schließen. Es bedarf also eines genauen Wissens der strukturellen und statistischen Eigenschaften der Probe, damit eine Interpretation der experimentellen Ergebnisse möglich ist.

Kapitel 4

Experimentelle Durchführung

Das in dieser Arbeit aufgebaute Femtosekunden-Nahfeldmikroskop besteht aus der Kombination eines fs-Anrege-Abtast-Spektrometers mit einem Nahfeldmikroskop für variable Temperaturen. Die Experimente wurden an einer Mehrfach-Quantenfilmstruktur durchgeführt. In diesem Kapitel soll neben der Darstellung der Eigenschaften dieser Probe der experimentelle Aufbau vorgestellt werden. Insbesondere findet die notwendige Pulskompression, sowie die Darstellung des optischen Rückkopplungsmechanismus besondere Beachtung.

4.1 Die Mehrfachquantenfilmstruktur

Die Experimente wurden an einer GaAs-Mehrfachquantenfilmstruktur (MQW) mit Quantenfilmen unterschiedlicher Dicke auf einem GaAs(100)-Substrat untersucht. Diese besitzt insgesamt 12 Quantenfilme unterschiedlicher Dicke, die durch AlAs/GaAs SPS-Barrieren¹ getrennt sind [Esh00]. Die SPS-Barrieren bestehen aus 8 abwechselnd gewachsenen 2.7 nm dicken AlAs und GaAs-Schichten. Die genaue Schichtfolge ist in Tab. 4.1 dargestellt. Das Wachstum von SPS-Barrierenschichten verhindert Legierungsschwankungen an den Grenzschichten und führt zu einer Glättung der Oberfläche [Pet84]. Um die Grenzflächenqualität noch zusätzlich zu erhöhen, wurden bei jedem Schichtwechsel 10 s lange Wachstumspausen eingeführt, d.h. der Molekularfluß der Gruppe-III-Elemente (Ga, Al) wurde bei konstantem As-Fluß unterbrochen [Esh00]. Die Wachstumspausen sind so kurz gehalten, dass noch keine Monolagenaufspaltung beobachtet wird und gleichzeitig der Einbau von Verunreinigungen in den Grenzflächen verhindert wird.

In Abb. 4.1 ist das Fernfeld-Photolumineszenzspektrum der Quantenfilme der Probe dargestellt. Die Messung zeigt deutlich die stark zunehmende inhomogene Verbreiterung der Fernfeld-Photolumineszenzspektren mit abnehmender Quantenfilmdicke (Gln. 3.18). Die nahezu homogenen Linienbreiten von 0.18 meV, 0.37 meV für die 19.8 nm bzw. 15.2 nm dicken Quantenfilme deuten auf eine sehr hohe Probenqualität mit geringer Unordnung hin. Bei keinem der Quantenfilme wird eine Monolagenaufspaltung beobachtet.

¹SPS: short period superlattice

	Filmdicke (nm)	Tiefe (nm)
Substrat		
	80	427
SPS		
L	19.8	383
SPS		
K	15.2	344
SPS		
J	12.2	308
SPS		
I	9.9	274.3
SPS		
H	8.3	242.2
SPS		
G	7.1	211.3
SPS		
F	6.3	181.2
SPS		
E	5.6	152.1
SPS		
D	5.1	123.2
SPS		
C	4.5	94.9
SPS		
B	4	67.1
SPS		
A	3.3	40

Tabelle 4.1: Schematischer Aufbau der Mehrfachquantenfilmstruktur. Die GaAs-Quantenfilme sind grau unterlegt und zur besseren Übersicht in den folgenden Abschnitten alphabetisch durchnummeriert. Die short-period-superlattice Barrieren (SPS) bestehen aus je 4 wechselweise gewachsenen GaAs bzw. AlGaAs-Schichten, die jeweils eine Dicke von 2.7 nm besitzen.

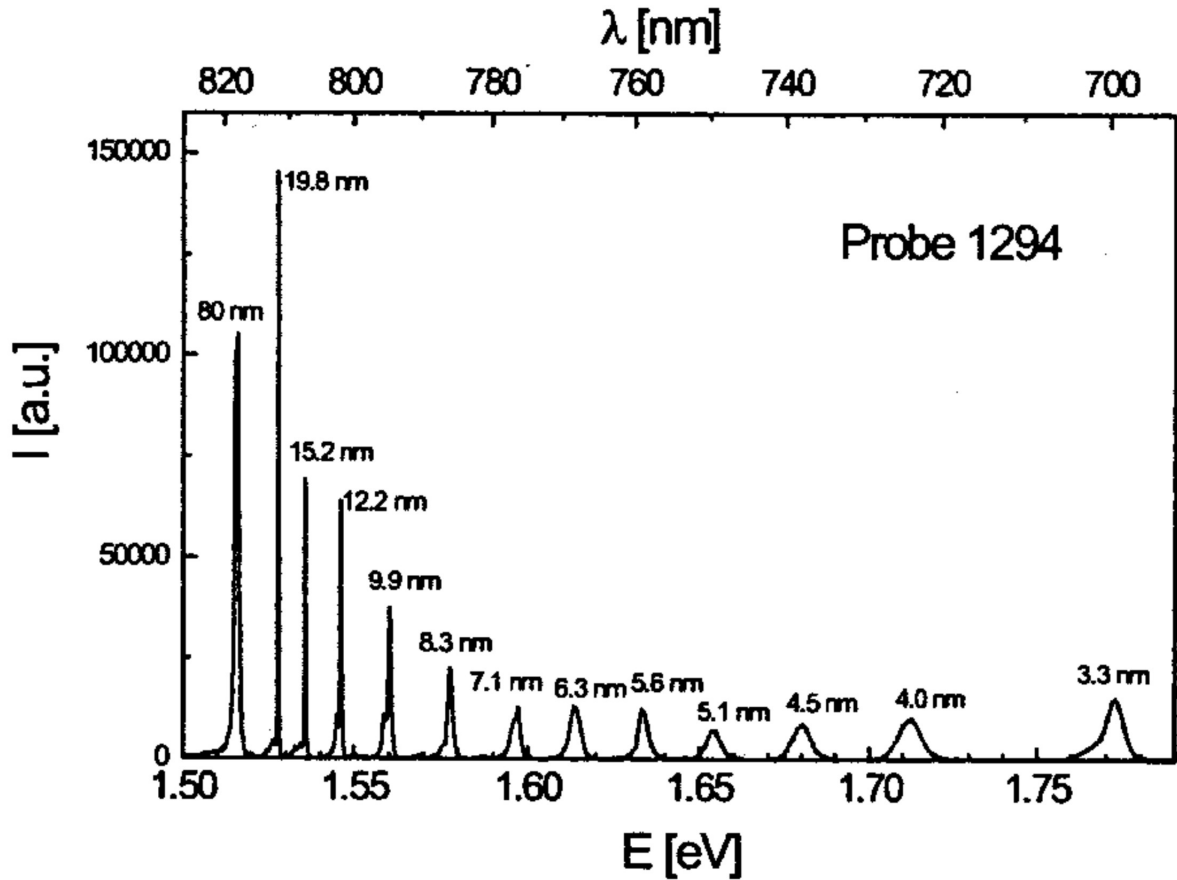


Abbildung 4.1: Mikro-Photolumineszenzspektren der Mehrfachquantenfilmstruktur. Die Probe enthält 12 Quantenfilme unterschiedlicher Dicke. Bei den Quantenfilmen mit einer Dicke von 19.8 nm und 15.2 nm werden schmale Linienbreiten von 180 μeV bzw. 370 μeV gefunden. Es wird keine Monolagenaufspaltung detektiert (aus: [Esh00]).

4.2 Das Nahfeldmikroskop

4.2.1 Die Nahfeldsonden

Die meisten Experimente in der optischen Nahfeldmikroskopie werden mit Apertursonden durchgeführt. Dabei wird Licht zumeist durch eine kleine Öffnung am Ende einer metallbedampften Nahfeldsonde, z. B. einer zu einer Spitze ausgezogenen Lichtleitfaser transmittiert. Wünschenswert sind für derartige Apertursonden große Öffnungswinkel, die hohe Transmissionen ermöglichen, eine wohldefinierte möglichst runde Apertur am Spitzenende und eine lichtundurchlässige Beschichtung der meist kegelförmigen Sonde. Deswegen wurde in den letzten Jahren von vielen Gruppen sehr viel Aufmerksamkeit in die Entwicklung und Perfektionierung dieser Sonden gelegt (siehe u. a. [Bet91, Jia92, Sai96]).

Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Experimenten wurden Glasfaserspitzen eingesetzt, die mit der Methode des Ätzens im umgebenden Mantel² gefertigt wurden.

²Mantel: *engl.: jacket*

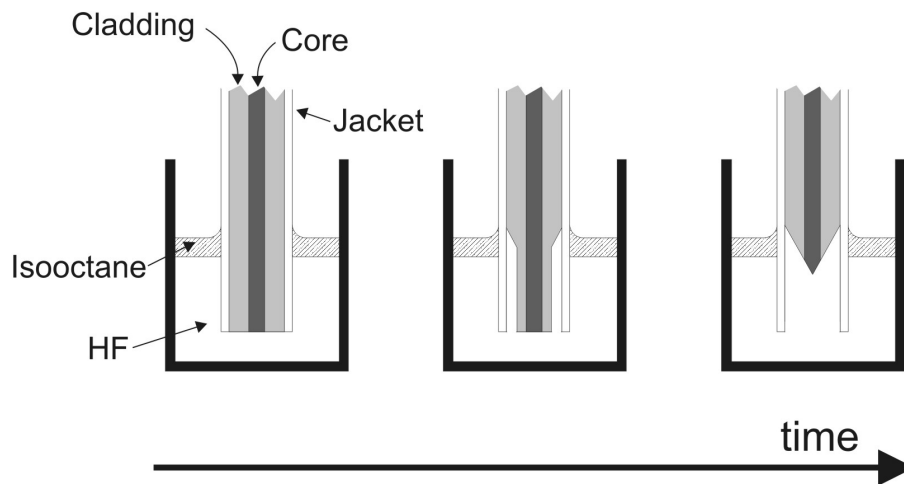


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Spitzen-Ätzprozesses im umgebenden Acrylatmantel.

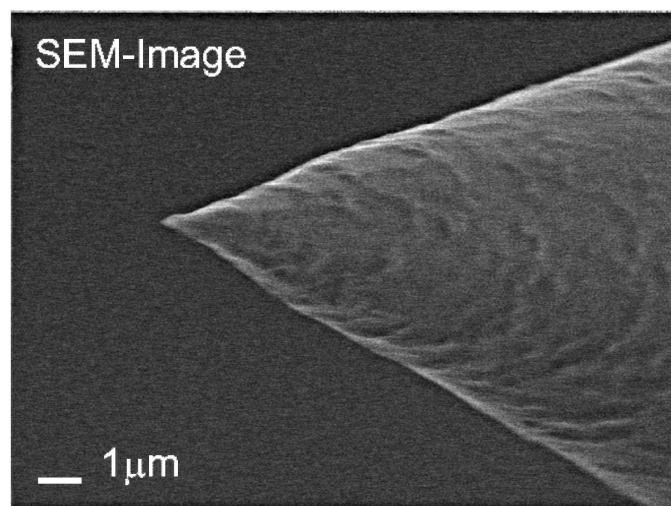


Abbildung 4.3: Rasterelektronenaufnahme einer typischen Glasfasernahfeldspitze, wie sie in den Experimenten eingesetzt wurde.

Die Technik wurde zuerst von Lambelet *et al.* [Lam98] und Stöckle *et al.* [Stö99] vorgeschlagen und basiert auf dem Ätzen einer Glasfaser durch ihren Acrylatmantel hindurch.

Dieser Prozeß ist in Abb. 4.2 schematisch dargestellt.

Eine optische single-Mode Glasfaser (3M FS-SN 4224), deren Acrylatmantel nicht entfernt wurde, wird in eine 48%-ige Flußsäurelösung (HF) getaucht. Um die Faser vor Säuredämpfen zu schützen wird die HF-Lösung von einer organischen Deckschicht (Isooctan) bedeckt. Während die HF-Lösung das SiO_2 des Glasfasermaterials angreift, bleibt das Acrylat unversehrt. Die HF-Lösung diffundiert durch den Mantel an die Glasfaser. Der gesamte Ätzzvorgang dauert 90 Minuten. Danach wird die Faser aus der Ätzlösung entfernt, mit Ethanol gereinigt und

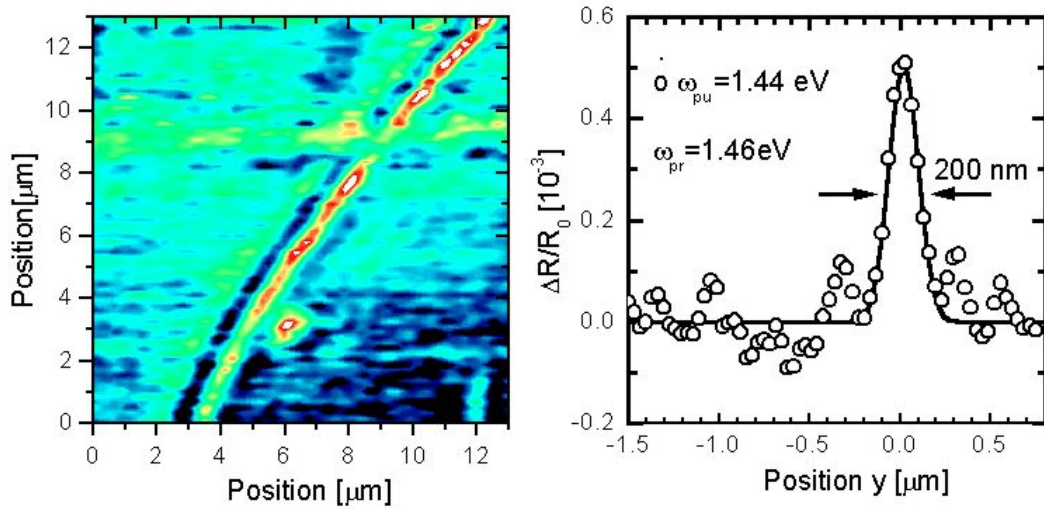


Abbildung 4.4: Räumlich-optische Auflösung des nichtlinearen optischen Signals eines Quantendrahts bei 300 K und einer Verzögerungszeit von $\Delta t = 10 \text{ ps}$ in Nahfeld-Anregungs-/Nahfeld-Abtast-Geometrie. (a) Die Landkarte einer GaAs(311)-Quantendrahtprobe zeigt bei einer Abtastenergie resonant zur Quantendrahtresonanz deutlich eine Reflektivitätsänderung, die dem Quantendraht zugeschrieben werden kann. (b) Der Schnitt senkrecht zum Quantendraht legt eine räumlich-optische Auflösung von 200 nm nahe (aus [Gue99]).

der Acrylatmantel mit Dichlormethan abgelöst. Zuletzt wird die entstandene Glasfaserspitze nochmals mit Ethanol gereinigt.

Während des Ätzens durch den Fasermantel hindurch bildet sich eine Spitze mit Öffnungswinkel von etwa 30° , die im Gegensatz zu herkömmlich geätzten Spitzen eine sehr glatte regelmäßige Oberfläche besitzt (Abb. 4.3). Diese Verbesserung der Oberflächenstruktur ist auf den folgenden Unterschied zurückzuführen. Wird die Spitze ohne Mantel geätzt, so ist die Grenzfläche zwischen HF und Isooktan bestimmend für das Oberflächenprofil. Diese Grenzfläche ist aber während des Ätzprozesses sehr instabil und verändert sich unregelmäßig. Bei Benutzung des Mantels wird die Höhe des Meniskus durch die Grenzfläche zwischen Fasermaterial, Acrylatmantel und organischer Deckschicht bestimmt. Da der Mantel während des Ätzvorgangs nicht angegriffen wird, ist diese Grenzfläche wesentlich stabiler und beeinflusst somit die Spitzenentstehung kaum. Der Vorgang wird vorwiegend durch Gradienten der Konzentration und Mikrokonvektion innerhalb des Mantels bestimmt. Gleichzeitig sorgt der Mantel dafür, dass der Ätzprozeß auf äußere Einflüsse wie Vibrationen oder Temperaturdrifts unempfindlicher ist.

Diese Methode bietet mehrere Vorteile: die Spitzen besitzen große Öffnungswinkel, der die Zone innerhalb der Glasfaserspitze, in der das Licht nicht mehr ungedämpft geleitet wird, im Vergleich zu ausgezogenen Glasfaserspitzen stark verkürzt. Im Gegensatz zu gewöhnlich geätzten Spitzen ist ihre Oberfläche viel glatter, wodurch bei einer Metallbedampfung die Entstehung von Fehlstellen und dadurch das Auftreten von lichtdurchlässigen Leckstellen abseits der eigentlichen Apertur weitgehend unterdrückt wird.

Mit einer so hergestellten Spitze kann bereits ohne eine Metallbeschichtung hervorragende Auflösung im *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie an Halbleiterproben erzielt werden (vgl. Abs. 3.2.3). Dies wurde in PL-Experimenten an einem GaAs-Halbleiterquantendraht in

Anregungs-/Aufsammel-Geometrie mit einer opt. Auflösung von 160 nm gezeigt [Int02]. Eine ähnlich hohe Auflösung konnte während der Arbeit für das nichtlineare optische Signal eines Quantendrahts bei Femtosekunden-Anrege-Abtast-Experimenten erreicht werden [Gue99]. Werden der Anrege- und der Abtastimpuls durch die gleiche Nahfeldsonde transmittiert (Nahfeld-Anrege/Nahfeld-Abtast-Geometrie) kann eine räumlich-optische Auflösung unter 200 nm erreicht werden. Dies wird anhand der räumlich aufgelösten Reflexionsänderung eines einzelnen GaAs(311)-Quantendrahts bei einer Verzögerungszeit von $\Delta t = 10$ ps deutlich. Wird die Energie des Abtastimpuls mit 1.46 eV resonant zu der Quantendrahtabsorption gewählt und diejenige des Anregeimpuls mit 1.44 eV resonant zu der Absorption des umgebenden Quantenfilms, so wird an Positionen des Quantendraht eine deutliche Reflektivitätsänderung detektiert. Der Schnitt senkrecht zum Quantendraht macht deutlich, dass die räumlich-optische Auflösung unterhalb 200 nm beträgt.

Aufgrund der hohen Auflösungseigenschaften wurde in den Experimenten auf eine Metallbedampfung verzichtet. Auf die Beschreibung des Bedampfungsprozesses sei deshalb auf [Int02] verwiesen.

4.2.2 Abstandsregelkontrolle

Einer der kritischen Parameter für die Durchführung nahfeldoptischer Untersuchungen ist der Abstandsregelmechanismus. Um gute räumliche Auflösung zu erzielen, muss die Spitze bis auf wenige Nanometer an die Probe geführt werden und der Abstand während der gesamten Messung stabil gehalten werden.

Scherkraftregelung:

Einer der in Nahfeldmikroskopen gängigen Regelmechanismen ist die Scherkkraftregelung unter Einsatz piezoelektrischer Elemente. Dazu wurden erstmals von Karrai *et al.* Stimmgabeln zur Regelung des Abstandes zwischen Probe und Spitze eingesetzt [Kar95]. Hierfür wird die Nahfeldsonde an der Stimmgabel befestigt (Abb. 4.5), und die Stimmgabel wird in der Resonanzfrequenz des Systems Stimmgabel-Spitze angeregt. Die detektierte Schwingungsamplitude dient zur Regelung des Abstandes zwischen Probe und Nahfeldsonde. Dabei wird gezielt die hohe Güte $Q \geq 100$ der mechanischen Resonanz einer piezoelektrischen Quarzstimmgabel ausgenutzt. Die detektierte Schwingungsamplitude ist ein äußerst sensibles Maß für den Abstand zwischen Spitze und Probe. Dieser Abstand kann damit über die Amplitude über einen Rückkoppelmechanismus konstant gehalten werden.

Quarzstimmgabeln mit einer Resonanzfrequenz von 32768 Hz (entspricht 2^{15}) sind kommerziell erhältlich. Zur Anregung der Resonanzfrequenz ist die Quarzstimmgabel starr auf einem Piezokeramikröhrchen befestigt, das als Vibrationsquelle dient. Dabei vibrieren die Stimmgabel und die an ihr befestigte Spitze parallel zur Probenoberfläche. Wird die Anregungsfrequenz so gewählt, dass sie genau der Resonanzfrequenz des Systems Stimmgabel - Spitze entspricht, erfährt die Stimmgabel die maximale Krümmungsamplitude. Über den piezoelektrischen Effekt erzeugt die Biegeschwingung der Stimmgabel eine Wechselspannung zwischen den zwei Kontakten, die proportional zur Schwingungsamplitude ist. Diese Wechselspannung wird an den Kontakten abgegriffen, zur Signalverstärkung und Rauschunterdrückung mit einem Vorverstärker verstärkt (Schaltung aus AD OP27E und LT1102, Gesamtverstärkung: 1000×) und mit Lock-In-Technik synchron zur Anregungsfrequenz detektiert. Bei der Annäherung der Spitze an die Probe wird die Amplitude der ungedämpf-

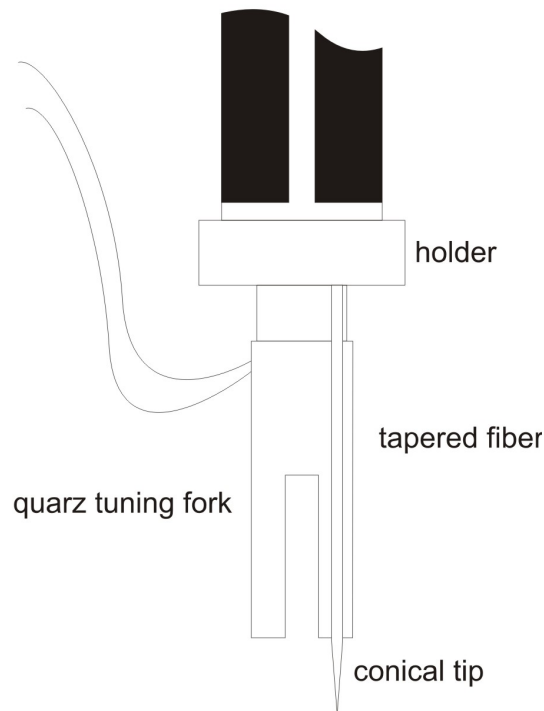


Abbildung 4.5: Schematischer Stimmgabelaufbau.

ten Vibration bei Abständen ≤ 20 nm zur Probe durch „Scherkräfte“ gedämpft und die Resonanzfrequenz verschoben (siehe auch [Kar00, Dav98, Gre96]). Die Spannungsamplitude wird abstandsabhängig vermindert. Mit einem elektronischen Rückkoppelmechanismus wird die gewünschte Kontrolle des Abstandes zwischen Spitze und Probe erreicht.

Probleme der mechanischen Rückkopplung:

Der oben beschriebene „mechanische Regelmechanismus“ basiert auf der Tatsache, dass Wechselwirkungskräfte zwischen Spitze und zu untersuchender Probe die Schwingung des Systems Spitze-Stimmgabel abstandsabhängig dämpfen [Kar95, Kar00, Dav98, Gre96]. Dies wirft aber auch gleichzeitig Probleme auf, denn die Wechselwirkung kann empfindliche optische Experimente beeinflussen [Dav98, Gre96]. Die Kräfte, die in der Größenordnung einiger 10 bis 100 pN auf kleinster Fläche (wenige nm^2) liegen, können Auswirkungen auf optische Eigenschaften von Halbleiterproben haben. Insbesondere bei der Untersuchung von Quantenpunkten kann der Einfluss dieser Wechselwirkung die optischen Eigenschaften irreversibel ändern. Quantenpunkte weisen extrem schmale Resonanzlinien mit Linienbreiten ≤ 100 μeV aus. Deren optische Eigenschaften sind empfindlich auf kleinste Änderungen der Struktur der Umgebung. So zeigten beispielsweise Robinson *et al.* an selbstorganisierten $\text{In}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{As}$ Quantenpunkten eine verspannungsinduzierte Blauverschiebung der Photolumineszenz-Emissionsenergie mit Verschiebungen bis zu 3.5 meV (vgl. Abb. 4.6) [Rob98].

An den untersuchten Strukturen führt die mechanische Wechselwirkung zu einer zeitabhängigen Verschiebung unterschiedlicher Resonanzlinien sowie zu einer Unterdrückung der

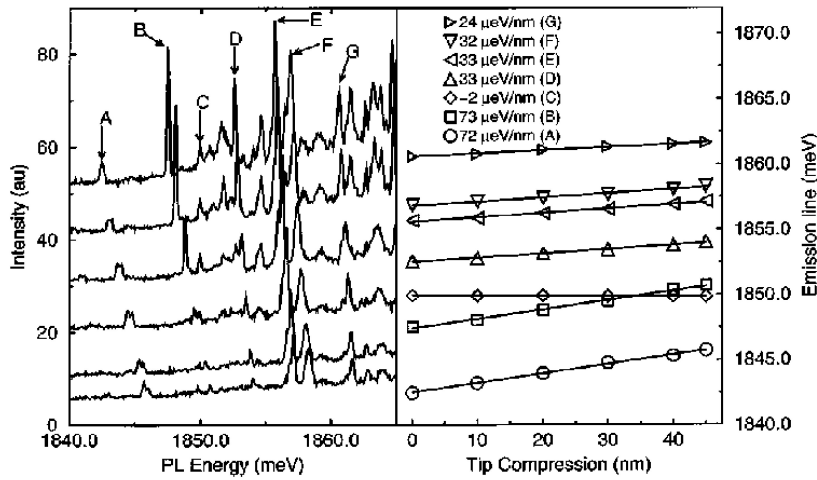


Abbildung 4.6: Änderung des Nahfeld-Photolumineszenzemissionsspektrum in Abhängigkeit der Kompression von Spitze und Probe von $In_{0.55}Al_{0.45}As$ Quantenpunkten. Die Resonanzlinien zeigen eine kompressionsabhängige Blauverschiebung. Unterschiedliche Grundzustände einzelner Quantenpunkte erfahren aufgrund unterschiedlicher Position relativ zur komprimierenden Spitze unterschiedlichen Stress, was sich in einer Änderung der Blauverschiebungsrates bemerkbar macht (aus [Rob98]).

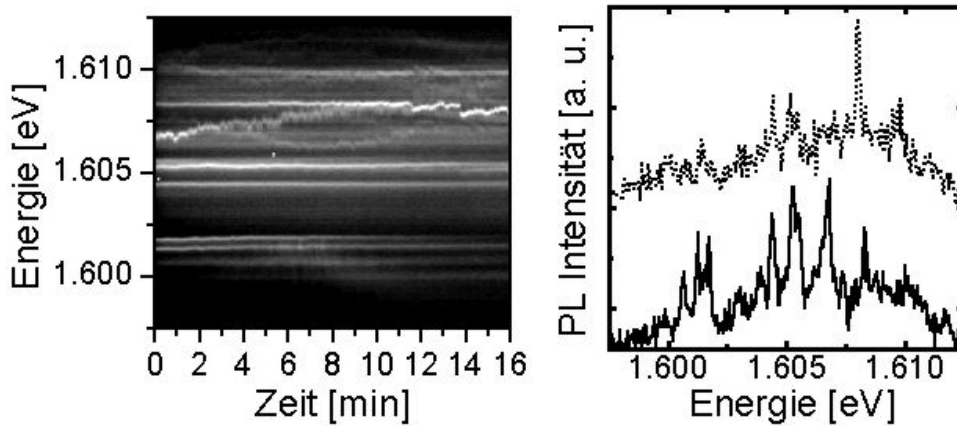


Abbildung 4.7: (a) Zeitverlauf der Photolumineszenzemission unter Benutzung des mechanischen Rückkoppelmechanismus an der Quantendrahtprobe. Deutlich sichtbar ist die Blauverschiebung einzelner Quantenpunktresonanzen. (b) Photolumineszenzspektrum direkt nach der Annäherung (-) und nach 15 min (·). Beide Spektren unterscheiden sich substantiell. Resonanzen sind in der Energie verschoben oder unterdrückt. Eine reproduzierbare Messung ist nicht möglich.

Photolumineszenz. In Abb. 4.7 sind Photolumineszenzspektren dargestellt, die im Abstand von je 0.3 s über einen Gesamtzeitraum von 16 min unter Verwendung der Stimmgabelrückkopplung an der Quantendrahtprobe aufgenommen wurden. Bereits innerhalb der ersten Minuten treten deutliche Blauverschiebungen einzelner Quantenpunktresonanzen auf. An anderen Resonanzenergien wird dagegen eine starke Verminderung der Photolumineszenzintensität detektiert.

Abstandsabhängigkeit der Reflexionsintensität:

Um derartige Änderungen der optischen Eigenschaften zu vermeiden, ist ein Regelmechanismus notwendig, bei dem mechanische Wechselwirkungen zwischen Spitze und Probe keinen Effekt auf die optischen Eigenschaften der Probe hat. Eine der Möglichkeiten hierzu ist die Ausnutzung der Abstandsabhängigkeit der von der Spitze aufgesammelten Reflexionsintensität. Charakteristische abstandsabhängige Intensitätsmessungen in *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie zeigen einen sehr starken, nahezu exponentiellen Anstieg der Reflexionsintensität mit Abnahme des Abstandes zwischen Spitze und Probe. In Abb. 4.8 sind derartige Reflexionskurven in *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie für qualitativ unterschiedliche Spitzen dargestellt. Für eine Annäherungskurve (a) ist eine sehr starke abstandsabhängige Überhöhung der Reflexionsintensität erkennbar und kann einer sehr scharfen Spitze zugeordnet werden. Für derartige Spitzen sind Überhöhungsfaktoren von bis zu 20 zwischen Fernfeld (Abstand $1\ \mu\text{m}$) und dem Einsetzen der mechanischen Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe keine Seltenheit.

Die Form der Reflexionskurve ist sehr stark abhängig von der Qualität der individuellen Spitze und von der Wellenlänge des eingesetzten Laserstrahls. Ist der Plateaudurchmesser der Spitzen sehr viel kleiner als die Wellenlänge des Laserstrahls ($d_{Pl} \ll \lambda$), die Spitze also sehr scharf, so wird eine starke Erhöhung der reflektierten Laserintensität beobachtet (Abb. 4.8, (a)). Besitzt die Spitze jedoch ein Plateau mit einem Durchmesser in der Größenordnung der Wellenlänge ($d_{Pl} \simeq \lambda$), so treten verstärkt Oszillationen auf dem Annäherungssignal auf unter gleichzeitiger Verminderung der Überhöhung (Abb. 4.8 (b)).

Anschaulich lässt sich das Auftreten dieser Oszillationen und die Erniedrigung des Überhöhungsfaktors anhand zweier Extrembeispiele beschreiben: betrachtet man zum einen eine Punktlichtquelle der Maximalintensität $I_0 = E_0^2$, die in alle Raumrichtungen gleichmäßig abstrahlt. Man nimmt weiter an, dass ein punktförmiger Detektor im Abstand $2 \times d$ die Intensität misst. Dann kann eine sehr starke Abstandsabhängigkeit der reflektierten Intensität beobachtet werden. Die detektierte Intensität bestimmt sich zu: $I(d) \propto d^{-6}$ [Sal91].

In einem zweiten Extremfall wird statt der Spitze eine geschnittene Glasfaser verwendet. Das von der Probe reflektierte elektromagnetische Feld interferiert mit der internen Reflexion des Faserendes. Es bilden sich stehende Wellen der Oszillationsperiode $d_{osc} = \lambda/2$ aus, die durch die Annäherung der Spitze genau abgefahren werden.

Eine reale Spitze besitzt Anteile beider Extremfälle. Bei einer sehr scharfen Spitze mit einem Plateaudurchmesser $d \ll \lambda/2$ dominiert der Anteil starker Intensitätsüberhöhung. Mit wachsendem Plateaudurchmesser erhöht sich der Anteil oszillierender Intensität und die Intensitätsüberhöhung tritt mehr und mehr in den Hintergrund.

Die starke Abhängigkeit dieser Annäherungskurve von der Qualität der Spitze lässt sich sehr gut zur Charakterisierung der Sonde einsetzen. Treten starke Oszillationen auf, hat sich die Qualität der Sonde verschlechtert. Die Spitze ist ungeeignet zur Durchführung weiterer

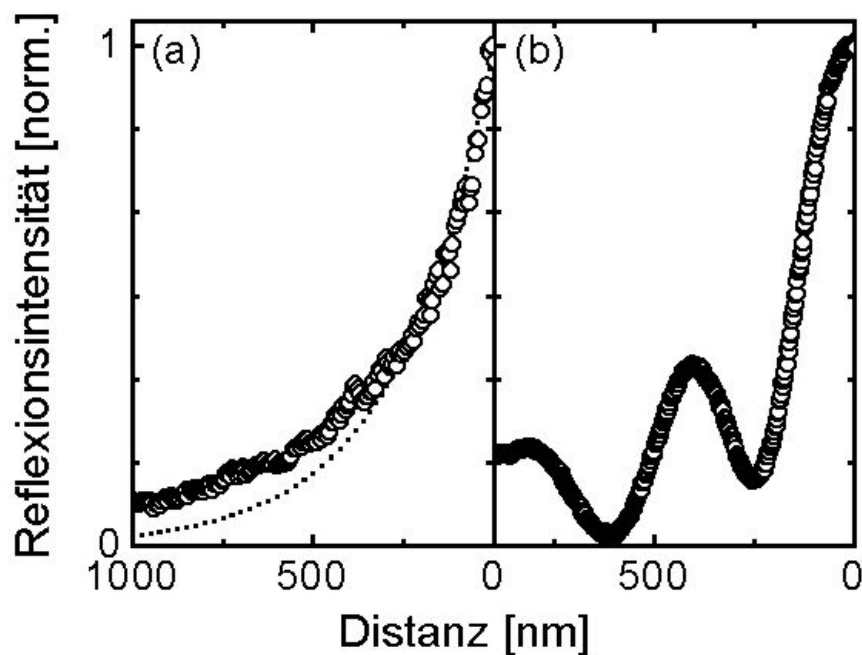


Abbildung 4.8: Abstandsabhängigkeit der Reflexionsintensität unterschiedlicher geätzter, unbedampfter Spitzen in *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie. (a) Bei einer qualitativ hochwertigen Spitze ist ein nahezu exponentieller Anstieg der Reflexionsintensität zu erkennen (· exponentielle Anpassung mit einem Abfall von 260 nm). (b) Abstandsabhängigkeit der Reflexionsintensität einer „stumpfen“ Spitze: die abstandsabhängige Reflexionsintensität weist starke Interferenzoszillationen auf.

Experimente und muss gegen eine neue Spitze ausgetauscht werden, die keine Oszillationen aufweist.

Die „optische“ Abstandsregelung

Die oben beschriebene Abstandsabhängigkeit der Reflexionsintensität in *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie kann gezielt genutzt werden, um den Abstand zwischen Nahfeldsonde und Probe „rein“ optisch zu regeln und konstant zu halten. Diese neuartige „optische“ Abstandsregelung wurde im Verlauf dieser Arbeit entwickelt und in den Experimenten eingesetzt.

In Abb. 4.9 ist der schematische Aufbau des Regelmechanismus dargestellt. Dazu das Licht eines Diodenlasers mit einer Wellenlänge von 820 nm in die Glasfaser eingekoppelt und durch die Nahfeldsonde transmittiert. Die eingekoppelte Leistung betrug dabei weniger als $1 \mu\text{W}$. Ein Teil der reflektierten und in der gleichen Faser aufgesammelten Intensität dieses Lichts wird vom Detektionspfad abgespalten. Anschließend wird das Laserlicht mit einem mechanischen Lichtzerhacker (hms) mit einer Frequenz $f = 1.2 \text{ kHz}$ moduliert und auf eine Si-Avalanchediode (EG&G) fokussiert. Detektiert wird das abstandsabhängige Signal mit Lock-In-Technik. Dieses dient als Regelsignal. Es wird vom Regelcomputer über eine AD/DA-Wandlerkarte (Data Translation, DT3016) aufgenommen. Das Nahfeldmeßprogramm vergleicht das Signal mit dem vorgegebenen Referenzwert und regelt die Spannung des z-Piezos dementsprechend nach. Der Referenzwert kann so eingestellt werden, dass

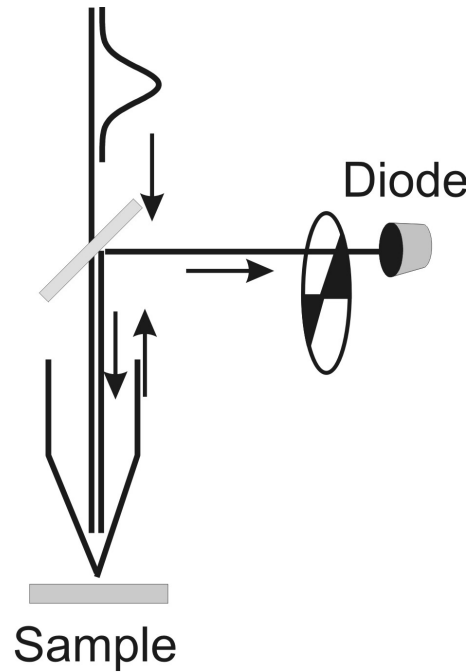


Abbildung 4.9: Schematischer Aufbau des optischen Rückkoppelmechanismus. Ein Teil der reflektierten Intensität des durch die Spitze transmittierten Laserlichts wird abgespalten, zerhackt und mit einer Photodiode mit Lock-In Detektion detektiert.

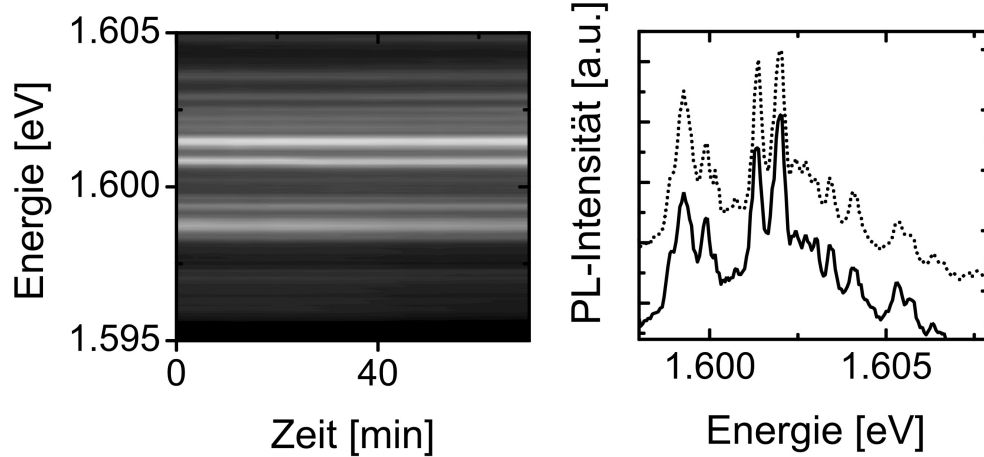


Abbildung 4.10: PL Emission aufgenommen nach anfänglicher Annäherung (-) und nach ca. 80 min (···) unter Verwendung des optischen Rückkoppelmechanismus. Die Photolumineszenzemission der unterschiedlichen Resonanzen bleiben über den gesamten aufgenommenen Zeitraum auf ihrer energetischen Position und die Intensität ist ebenfalls stabil. Weder eine spektrale Diffusion noch eine Änderung der Position aufgrund von thermischer Drift ist erkennbar.

Abstände zwischen Spitze und Probe im Bereich von 0 nm (Ansprechen der mechanischen Regelung) bis 200 nm geregelt werden können. Bei den Messungen wird der Referenzwert so gewählt, dass der Abstand auf ungefähr 30 ± 5 nm gehalten wird. Dadurch kann sichergestellt werden, dass während den Messungen die Probe **keiner** mechanischen Beanspruchung unterliegt und gleichzeitig die Auflösung nur minimal verringert wird. Dementsprechend bleiben die Resonanzenergien einzelner Quantenpunkte während der gesamten Meßzeit von mehreren Stunden konstant, wie in Abb. 4.10 dargestellt, und gleichzeitig wird die Anzahl der detektierten Emissionslinien nicht durch ein wesentlich größeres Anregevolumen erhöht.

4.2.3 Das Nahfeldmikroskop für variable Temperaturen

Für nahfeldoptische Untersuchungen an Halbleiternanostrukturen ist es wünschenswert, die Experimente bei möglichst geringer Probertemperatur durchzuführen, um temperaturabhängige Einflüsse zu reduzieren. Durch tiefe Temperaturen ist es möglich die thermischer Linienverbreiterung zu unterdrücken, sowie den Exzitonen-Absorptionskoeffizienten und der Lumineszenzquantenausbeute deutlich zu erhöhen. Deswegen wird bei optischen Untersuchungen an Halbleiterproben versucht, die Temperatur soweit wie möglich zu drücken, was z. B. durch Flüssig Helium-Kryostaten möglich ist.

Ein erstes Tieftemperaturnahfeldmikroskop wurde von Grober *et al.* konstruiert [Gro94]. Bei diesem Aufbau werden sowohl die Probe als auch der gesamte Rasterkopf, mit flüssigem Helium gekühlt. Die meisten Tieftemperatur-Nahfeldmikroskope, die bis heute eingesetzt werden, basieren auf diesem Prinzip [Gha95, Gö97, Dur99, Lev96, Tod98]. Die Kühlung der gesamten Rastereinrichtung hat jedoch einige Nachteile: Piezoelektrische Elemente, die für Rastersondentechniken unerlässlich sind, ändern ihre maximale Ausdehnung sehr stark mit der Temperatur [Dav86]. Typischerweise reduziert sich dadurch der maximale Rasterbereich der eingesetzten Piezokeramiken aus Blei-Zirkonat-Titanat (PZT) bei 10K auf etwa 20 % der Ausdehnung bei Raumtemperatur. Die Probe kann deswegen nur in einem Rasterbereich von $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ untersucht werden. Unterschiedliche Temperaturen führen zu unterschiedlichen Rasterbereichen. Dies macht eine Linearisierung des Rasterbereichs kompliziert und der Rasterkopf muß für jede Temperatur kalibriert werden. Auch der Abstandsregelmechanismus wird beeinflusst, da eine Änderung der Temperatur gleichzeitig eine Änderung der Resonanzfrequenz des Scherkraftregelmechanismus bedeutet.

Das bei der Durchführung der Experimente eingesetzte Nahfeldmikroskop für variable Temperaturen verfolgt eine andere Strategie und wurde zum ersten Mal von Behme *et al.* konstruiert und eingesetzt [Beh97]. Dabei wird nur die Probe über einen Kühlfinger gekühlt, der gesamte Rasterkopf und die Spitze jedoch nicht.

Das in dieser Arbeit eingesetzte Nahfeldmikroskop für variable Temperaturen ist eine leicht modifizierte Variante des in [Beh97] beschriebenen Mikroskops. Der schematische Aufbau ist in Abb. 4.11 dargestellt und wird im folgenden kurz beschrieben:

Die Vakuumkammer

Das gesamte Nahfeldmikroskop befindet sich in einer Vakuumkammer aus Edelstahl mit einer Wandstärke von 6 mm, welche von einer magnetgelagerten Turbomolekularpumpe (Seiko STP-400) bis auf einen Druck von 2×10^{-7} mbar evakuiert wird. Der Turbomolekularpumpe ist eine Drehschieberpumpe vorgelagert, um das erforderliche Vorvakuum zu

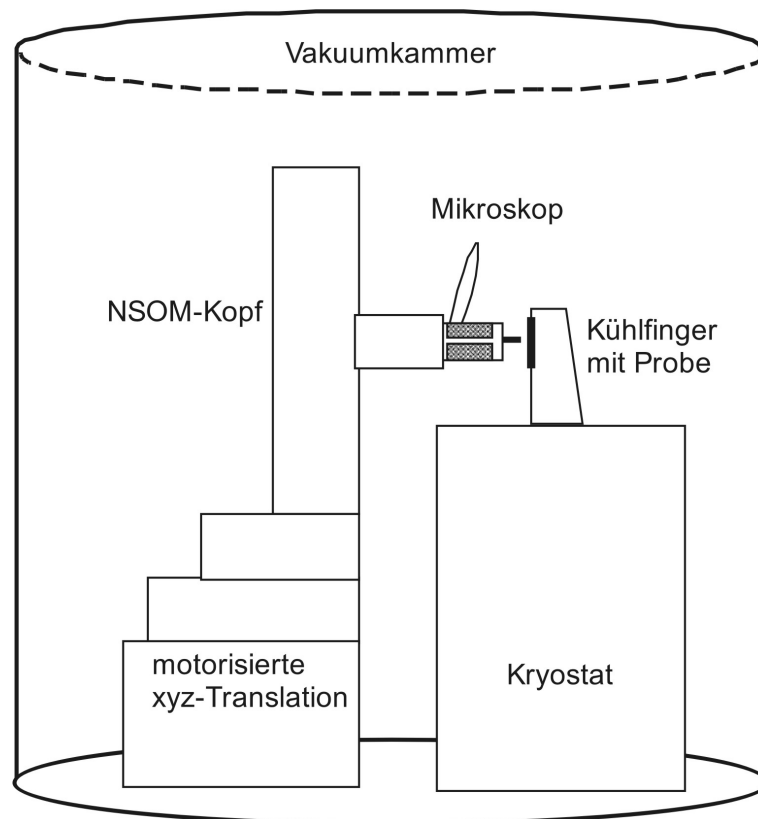


Abbildung 4.11: Schematischer Aufbau des Nahfeldmikroskops für variable Temperaturen.

erzeugen. Die Magnetlagerung der Turbomolekularpumpe ist unerlässlich, um Vibrationen ausgehend von der Rotation der Pumpe weitgehend zu unterdrücken. Testuntersuchungen zeigten, dass die Stabilität des Nahfeldmikroskops während der Messung nicht durch die Turbomolekularpumpe beeinflusst war, so dass sie während der Messungen in Betrieb bleiben konnte. Zur Unterdrückung störender Außeneinflüsse ist die gesamte Vakuummkammer auf zwei aktiv vibrationsdämpfenden Komponenten (HWLbioanalytic MOD 2) gelagert, die zusammen mit den optischen Aufbauten auf einem vibrationsisolierten optischen Tisch (Newport:RS3000 mit pneumatischen Isolationsfüßen I-2000) aufgebaut sind.

Der Rasterkopf:

Die Schlüsselkomponente des Rasternahfeldmikroskops ist der Rasterkopf, der schematisch in Abb. 4.11 dargestellt ist. Dieser beinhaltet die Nahfeldsonde, den Abstandsregelmechanismus und auch die Komponenten zur Grob- und Feinpositionierung der Spitze, die Vorverstärker für die Scherkraftregelung, sowie die Optik für die Spitzenannäherung und Signaldetektion. Zwei Lineartranslationsbühnen (Newport: UMR-16) und eine Vertikalhebebühne (Newport: MVN80) ermöglichen die Grobpositionierung in alle drei Raumrichtungen über einen Bereich von 16 mm in x- bzw. z-Richtung, respektive 10 mm in y-Richtung. Die Translationsbühnen werden von drei Stellmotoren (Newport: 860A) mit einer Schrittweite von 500 nm bewegt und können von außerhalb der Vakuummkammer angesteuert werden. Ein Hochspannungspiezo (ValpeyFisher PZT 50-A), der mit Spannungen zwischen -20 V und +100 V betrieben wird, und einen Hub von 1.5 μm besitzt, dient zur Feinpositionierung

der Spitze senkrecht zur Probe. Das Abrastern in x-y-Richtung parallel zur Probe erfolgt über einen Hardware-linearisierten, vakuumtauglichen x-y-monolithischen Rastertisch (PI: P-P15.700). Dabei stellt die Hardware-Linearisierung sicher, dass die angelegte Spannung linear in die Auslenkung des Tisches umgesetzt wird. Der maximale Arbeitsbereich dieses Tisches beträgt $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$. Ein $20\times$ Mikroskopobjektiv mit einer numerischen Apertur von 0.35 und einem Arbeitsabstand von 20 mm (Nikon SLWD20) ermöglicht Fernfelddetektion, Fernfeldanregung, oder es kann mit Hilfe einer externen CCD-Kamera die Probenregion unterhalb der Spitze beobachtet werden. Dies ermöglicht die Auswahl geeigneter Probenregionen, sowie die anfängliche Grobannäherung der Spitze an die Probe.

Der Kryostat:

Die Proben wurden mit Silberleitlack auf dem goldbeschichteten Probenhalter aus Kupfer befestigt, der über direkten Kontakt zu einem Heliumdurchflußkryostat (Cryovac, Konti-Kryostat) gekühlt wurde. Der Kryostat wurde ursprünglich für Rasterelektronenmikroskopie bei tiefen Temperaturen entwickelt und speziell an unseren Aufbau angepaßt. Der Heliumfluß beträgt ungefähr 1-1.5 l/h. Bei diesem Fluß weist der Kryostat maximal eine Schwingungsamplitude deutlich unterhalb von 20 nm auf. Die Temperatur wird durch eine elektronische Steuereinrichtung geregelt (Cryovac) und kann im Bereich zwischen 10 K und 300 K mit einer Genauigkeit von 0.1 K auf der Probe konstant gehalten werden. Die Abkühlzeit des Kryostaten beträgt ungefähr 30 min. Einige Stunden nach der ersten Abkühlung befindet sich die gesamte Apparatur im thermischen Gleichgewicht, so dass Messungen über zahlreiche Stunden **ohne** störende Einflüsse von Drifteffekten an einem einzelnen Punkt auf der Probe möglich sind (vgl. Abb. 4.10).

4.3 Die fs-Lichtquelle

4.3.1 Der Ti:Saphir-Oszillator

Für die Untersuchung kohärenter und inkohärenter Prozesse unterschiedlicher Halbleiternanostrukturen sind Laserlichtquellen notwendig, die ultrakurze Lichtimpulse mit Dauern von wenigen Femtosekunden Dauer in einem großen Spektralbereich von 700-900 nm liefern. Als aktives Medium bietet sich ein mit Titan dotierter Saphirkristall an. Dieser zeichnet sich durch ein breites Fluoreszenzspektrum von 660-110 nm und ein Absorptionsspektrum von 450-600 nm aus [Spi94] und wurde bereits vielfach für die Erzeugung kürzester Lichtimpulse eingesetzt [Asa93, Cur93, Spe91b, Spe91a, Spi94].

Das in den Experimenten eingesetzte Ti:Sa-Lasersystem ist in Abb. 4.12 dargestellt: Der Aufbau ist hierbei ähnlich zu den von [Jos98, Cur93, Asa93] eingesetzten Systemen und ist asymmetrisch z-konfiguriert. Als aktives Medium wird ein 10 mm dicker Ti:Sa-Kristall mit 5 mm Durchmesser (in Indium-Folie gehalten, auf 13°C gekühlt) eingesetzt, der mit einem Ar^{2+} -Laser (Coherent Innova 420, Maximalleistung 25 W) mit einer mittleren Leistung von 5.0-5.5 W optisch gepumpt wird. Mit Hilfe zweier dielektrischer Spiegelsätze kann ein Wellenlängenbereich zwischen 700 und 800 nm bzw. zwischen 780 und 880 nm vorausgewählt werden.

Am Ende des kurzen Armes des Resonators wird ein dielektrischer Auskoppelspiegel mit

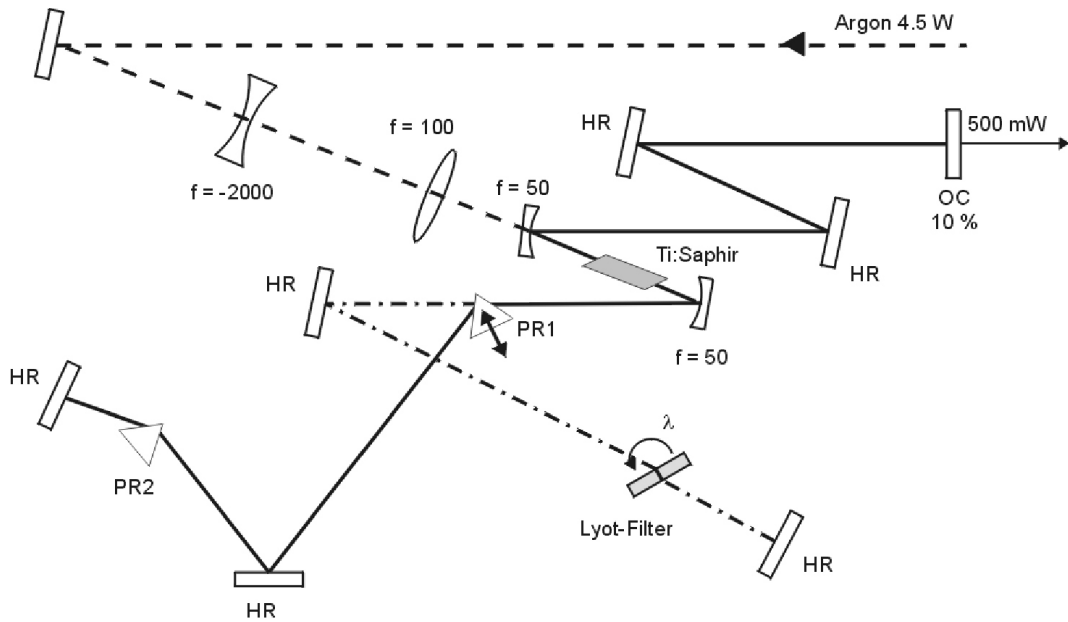


Abbildung 4.12: Schematischer Aufbau des eingesetzten Ti:Sa Lasersystems

einer Transmission von 10% verwendet, um einen Teil der im Resonator umlaufenden Impulsenergie auskoppeln zu können. Der lange Arm kann entweder für den Dauerstrichbetrieb mit hoher spektraler Auflösung von $\frac{\Delta E}{E} \approx \frac{0.1 \text{ meV}}{1.6 \text{ meV}}$ oder für den Impulsbetrieb mit Impulsen von 30 fs Dauer umgebaut werden. Bei einer Repetitionsrate von 80 MHz wird eine mittlere Leistung von typischerweise 250 - 300 mW aus dem Resonator ausgekoppelt.

Neben der grossen Fluoreszenzbandbreite ist für die Entstehung kurzer Impulse weniger fs Dauer das Kerr-Lens-Mode-Locking entscheidend [She84]. Das Kerr-Lens-Mode-Locking wird hervorgerufen durch einen intensitätsabhängigen Brechungsindex (optischer Kerr-Effekt) des Laserkristalls: $n(\omega, I) = n_0(\omega) - n_2(\omega) \cdot I(\omega)$ (n_0, n_2 : linearer bzw. nichtlinearer Brechungsindex), der auf eine Änderung der Suszeptibilität höherer Ordnung ($\chi^{(3)}$) zurückzuführen ist [Sal91].

Aufgrund dieses nichtlinearen Brechungsindex wirkt das Medium als zusätzliche Linse für die Femtosekunden-Impulse, die im Resonator umlaufen. Sie verändert somit die Strahlführung kurzer Impulse gegenüber den cw-Moden. Durch eine geeignete Anpassung des Resonators an die Kerr-Linse kann für die Impulsmoden eine höhere Verstärkung als für die cw-Mode erreicht werden, was dazu führt, dass die Impulsmoden energetisch bevorzugt wird. Intensive Studien hierzu finden sich in den Arbeiten von Hasche und Joschko [Has96, Jos98].

Ein im Laserresonator eingesetzter Prismenkompressor, bestehend aus zwei SF10 Prismen, gleicht die zeitliche Verbreiterung des Laserimpulses aus, das durch das aktive Lasermedium hervorgerufen wird. Somit kann erreicht werden, dass der ausgekoppelte Laserstrahl keine zeitliche Verbreiterung besitzt, sondern dessen Zeitstruktur bandbreitenbegrenzt ist.

Ein im fs-Arm eingebauter variabler Spalt bietet die Möglichkeit die Bandbreite einzuschränken sowie den Laserimpuls auf die gewünschte Zentralwellenlänge zu verschieben.

4.3.2 Bestimmung der Impulscharakteristik

Zur Bestimmung der Charakteristik der im Laserresonator erzeugten Lichtimpulse werden verschiedene Methoden eingesetzt. Neben der Bestimmung der Wellenlänge und Bandbreite des Lasers sind wesentliche Charakterisierungsmerkmale die Impulslänge, die Intensitätsschwankungen und die Impulsabfolge der jeweiligen Impulse. Dabei muß sichergestellt werden, dass die Impulsabfolge bei Experimenten an Halbleitern nicht kürzer als 10 ns ist, um mögliche Akkumulationseffekte zu verhindern.

Für die spektrale Analyse wird ein optischer Vielkanalanalysator (OMA) mit 512 Kanälen eingesetzt, der sich am Ende eines $f = 0.25$ m Monochromators (SPEX 1681) zur spektralen Dispersion befindet und den Puls mit einer spektralen Auflösung von 0.1 nm charakterisiert. Die zeitliche Abfolge und Intensität der Pulse kann mit Hilfe einer ultraschnellen Photodiode (Anstiegszeit $t_{rise} \leq 1$ ns) im Zeitfenster von 1-12 ns kontrolliert werden³.

Zur Bestimmung der Impulsdauer wird ein Autokorrelationssystem in nicht kollinearer Geometrie eingesetzt, das ähnlich zu dem Aufbau von Ashworth *et al.* ist [Ash91]. In einem derartigen System wird der einfallende Laserstrahl in zwei Teile gleicher Intensität $I_1(t)$, $I_2(t)$ geteilt und einer der beiden Strahlen um die Zeitdauer Δt verzögert. Die beiden Strahlen werden dann in unterschiedlicher Ausbreitungsrichtung \mathbf{k}_1 und \mathbf{k}_2 auf einen BBO-Kristall fokussiert. Bei geeigneter Wahl der Ausbreitungsrichtungen \mathbf{k}_1 und \mathbf{k}_2 zur optischen Achse des Kristalls wird Intensität der doppelten Frequenz (SHG) in der Richtung $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$ erzeugt. Dies kann mit Hilfe eines Photomultipliers detektiert werden.

Die detektierte SHG-Intensität ist dabei direkt proportional zur Intensitätskorrelationsfunktion 2. Ordnung $G^{(2)}(\Delta t)$ [Dem91]:

$$I(\Delta t) \propto G^{(2)}(\Delta t) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} I_1(t) I_2(t + \Delta t) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} I_1(t) I_2(t) dt}$$

Da bei der Autokorrelationsmessung (AC) wegen ihrer symmetrischen Struktur in Δt keine eindeutige Aussagen über die Impulsform gemacht werden können, kann die Impulsdauer nur unter Annahme einer bestimmten Pulsform bestimmt werden. In der Regel wird ein Gauß- oder ein Sekanshyperbolikus (Sech)-Profil für den Impuls angenommen. Bei Annahme eines Gaußschen Zeitprofils ergibt sich die Halbwertsbreite des Impulses direkt durch:

$$FWHM_{Pulse} = FWHM_{AC} / \sqrt{2}.$$

In Abb. 4.13 ist die spektrale und temporale Form eines charakteristischen Anregeimpulses für die Fernfeldanregung nach Optimierung der Pulsdauer durch einen Prismenkompressor dargestellt. Der Impuls ist spektral zentriert bei 800 nm und hat eine Zeitdauer von 36 fs. Dies entspricht einem Impuls-Bandbreitenprodukt $\Delta\omega_{FWHM} \cdot \tau_{FWHM} \simeq 2\pi \cdot 0.88$. Dies entspricht bis auf einen Faktor 2 dem minimal möglichen Impulsbandbreitenprodukt von $\Delta\omega_{FWHM} \cdot \tau_{FWHM} = 0.441$ [Die96].

4.3.3 Impulskompression

Für die Durchführung der Experimente ist es notwendig, möglichst kurze Pulsdauern nach Austritt aus der Nahfeldsonde zu erhalten. Da dispersive Medien die Pulsdauern

³Die 12 ns sind bestimmt durch die hohen Repetitionsrate von 80 MHz des Ti:Sa-Oszillators

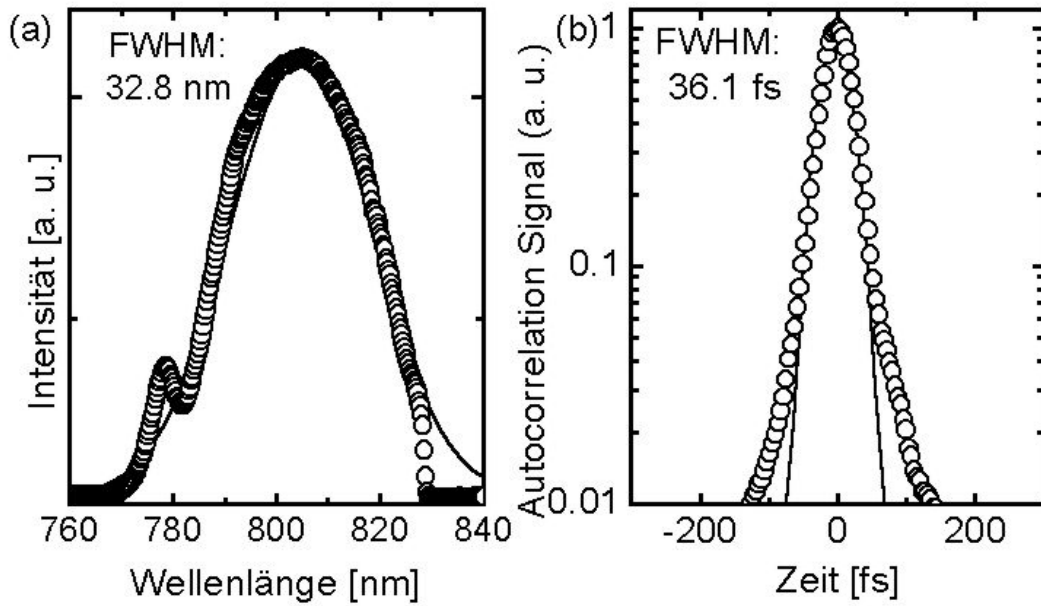


Abbildung 4.13: Typische Impulscharakteristik der aus dem Ti:Sa-Lasersystem ausgekoppelten fs-Impulse. Der Puls mit einer Halbwertsbreite von 33 nm (a) besitzt eine nahezu bandbreitenbedingte Zeitdauer von 36 fs (b).

verlängern muss eine Vorkompensation erfolgen.

Die Impulsdaueränderung bei Ausbreitung durch ein dispersierendes Medium wird durch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion $GVD = \frac{\partial^2 \omega}{\partial \lambda^2}$ des Mediums bestimmt. Diese sorgt dafür, dass ein ursprünglich *ungechirpter* fs-Impuls zeitlich stark verbreitert wird [Dem91]. Glasfasern mit Längen von bis zu 140 cm würden so einen ursprünglichen 30 fs langen Impuls auf Dauern von mehreren Pikosekunden verbreitern. Eine Vorkompensation mit negativer GVD ist daher unerlässlich, um die positive GVD der Glasfaser auszugleichen. Es bieten sich zwei Aufbauten zur Kompensation an, die im Verlauf dieser Arbeit in Experimenten eingesetzt wurden: ein Prismen- und der Gitterkompressor:

Der Prismenkompressor:

Der Aufbau des Prismenkompressors ist ein gewöhnlicher 2-Prismen Aufbau in Brewster-Geometrie, der in Abb. 4.14 dargestellt ist [Dua82, For84]. Er besteht im wesentlichen aus zwei Prismen desselben Materials. Unterschiedliche Wellenlängen werden am ersten Prisma aufgespalten und nehmen im weiteren Verlauf unterschiedliche optische Wege, abhängig von dem Einfallswinkel α , dem Öffnungswinkel (β) und dem wellenlängenabhängigen Brechungsindex $n(\lambda)$ des Prismas. In Brewster-Geometrie, d. h. im Falle minimaler Ablenkung und symmetrischer Strahlwege, wird die Dispersion des Impulses durch den Abstand des Prismenpaares ℓ und die durchschnittlich vom aufgespaltenen Strahl zu durchlaufende Dicke L des dispersiven Materials des zweiten Prismas bestimmt. Für einen typischen Prismenkompressor in Brewster-Geometrie gilt für die Dispersion [Die96]:

$$D_\lambda(\lambda) \approx \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \left[L \frac{d^2 n(\lambda)}{d\lambda^2} - 4\ell \left(\frac{dn(\lambda)}{d\lambda} \right)^2 \right] \quad (4.1)$$

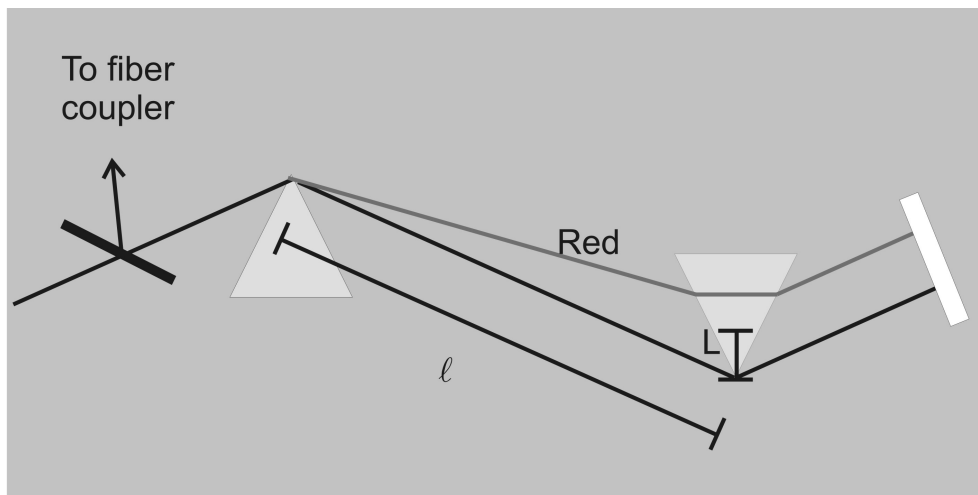


Abbildung 4.14: Schematischer Aufbau eines Prismenkompressors.

Material	$\frac{dn}{d\lambda} [\mu m^{-1}]$	$\frac{d^2n}{d\lambda^2} [\mu m^{-2}]$	$\frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2n}{d\lambda^2} [fs^2/cm]$
SiO_2	-0.0017	0.04	362
SF10	-0.04958	0.17551	1500

Tabelle 4.2: Typische Glasparameter für Quarz bzw. SF10 bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm

Kurzwellige Komponenten des Strahls legen kürzere optische Wege zurück als langwellige, die gewünschte negative GVD wird erreicht. Bei geeigneter Wahl des Prismenabstandes ℓ und der durchschnittlichen Wegstrecke im dispersiven Material des zweiten Prismas L kann die positive GVD der anschließenden Glasfaser kompensiert werden. In Tab. 4.2 sind typische Werte für Quarzglas, bzw. SF10-Prismen bei $\lambda = 800$ nm dargestellt [Sch96, Die96].

Zum Ausgleich des positiven GVD einer ca. 40 cm langen Glasfaser ist bei einem Prismenkompressor bestehend aus zwei SF10-Prismen ein Prismenabstand von ca. 190 cm notwendig. Im Experiment kann eine Pulsdauer am Ende der Glasfaser von 115 fs erzielt werden, wie in Abb. 4.15 dargestellt.

Ein Nachteil des Prismenkompressors liegt in der relativ langen zu durchlaufenden Wegstrecke. Aufgrund der Divergenz des Laserstrahles wird zusätzlich eine laterale Dispersion (lateraler Chirp) beobachtet.

Der Gitterkompressor:

Muß wie im Tieftemperaturnahfeldmikroskop deutlich mehr Glasfaser durchlaufen werden, so eignet sich ein Prismenkompressor nicht mehr zur Kompensation der positiven GVD. Bei einer ca. 140 cm langen Glasfaser müßte die Distanz der Prismen eines SF10-Prismenkompressors über 6 m betragen, was den Aufbau auf einem optischen Tisch enorm erschwert und die notwendige Ausdehnung erhältlicher Prismen sprengt. Deswegen ist der Einsatz eines sogenannten $2f$ -Gitterkompressors notwendig. In Abb. 4.16 ist ein solcher Kompressoraufbau dargestellt. Für die Kompression wesentlich ist hierfür die Brennweite f

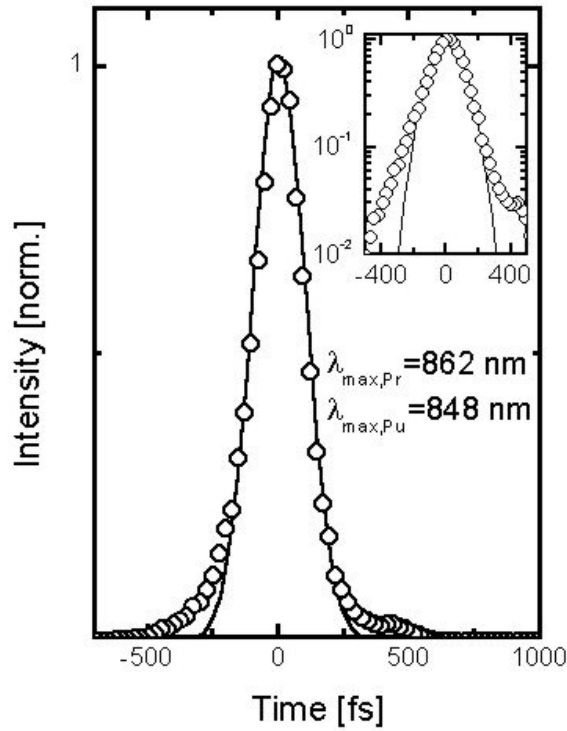


Abbildung 4.15: \circ Kreuzkorrelation zwischen Anrege- und Abtastimpuls nach dem Durchlauf von 40 cm Glasfaserstrecke. Die Anpassung mit einem Gauß-Profil zeigt eine Halbwertsbreite der Kreuzkorrelationsfunktion von 160 fs, der einer Impulsdauer von 115 fs entspricht

der eingesetzten Linse in Zusammenhang mit der Auslenkung der Linse aus der Brennebene.

An einem Gitter wird der Impuls wellenlängenabhängig aufgespalten: Es gilt $\sin \alpha - \sin \beta = \lambda/d$ (d : Gitterkonstante des Gitters, α : Winkel des einfallenden Impulses β : Beugungswinkel der Wellenlänge λ). Dabei wird der langwellige Anteil stärker gebrochen, als die kurzwelligen Strahlen. Steht das Gitter im Fokus der Linse, so wird der spektral aufgesplante Impuls parallelisiert und die jeweiligen Frequenzen in der Richtung der auf den im Fokus stehenden Spiegel fokussiert. Der Reflexionsweg ist identisch zu dem Einfallsweg. Es ergibt sich kein Wegunterschied zwischen den einzelnen Spektralkomponenten und folglich hat dieser „Nulldispersionsaufbau“ auch keine Auswirkungen auf das Zeitverhalten des Impulse.

Wird der Abstand zwischen Gitter und Linse geändert und beträgt der Gesamtabstand somit $x_1 = f + \delta$, so werden für die unterschiedlichen Spektralkomponenten zusätzliche optische Wege eingeführt [Mar87]. Für die dadurch hervorgerufene GVD ergibt sich hierbei:

$$D_\lambda = \frac{-\lambda^3}{2\pi c^2 \cos(\beta)^2 d^2} 2\delta \quad (4.2)$$

wobei β den Beugungswinkel der Zentralwellenlänge λ beschreibt [Mar87, Die96]. Man erhält also positive GVD, wenn x_1 verringert wird und negative bei einer Vergrößerung des Abstandes. Durch geeignete Wahl der Abstände zwischen Gitter und Linse, kann der *Chirp* so eingestellt werden, dass die Impulsverlängerung, die durch die Faser hervor-

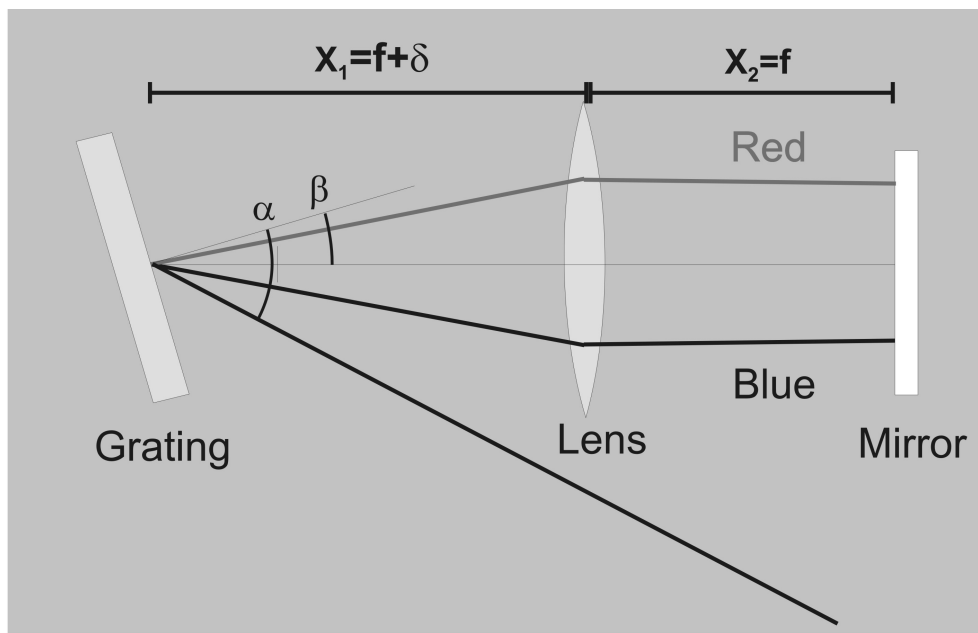


Abbildung 4.16: Schematischer Aufbau eines Gitterkompressors

gerufen wird, kompensiert werden kann. In Abb. 4.17 ist die Kreuzkorrelation zwischen Chirp-vorkompensierten Anrege- und Abtastimpulsen nach Propagation durch 136 cm Faser abgebildet.

Die Halbwertsbreite von 300 fs lässt auf eine Impulsdauer von ungefähr 200 fs am Ende der Faser schließen.

Zu berücksichtigen ist dabei allerdings, dass derartige Kompressoraufbauten nur geeignet sind, die lineare GVD auszugleichen. Will man jedoch noch kürzere Pulse erreichen, so muss auch die Dispersion höherer Ordnung kompensiert werden. Mögliche Aufbauarten sind eine Kombination aus Prismen- und Gitterkompressor, aufgrund unterschiedlicher Beiträge zum kubischen *chirp* [Whi93], oder der Einsatz von „Pulsshaperaufbauten“, wie sie von Heritage *et al.* im sichtbaren und Nahinfraroten seit längerem verwendet werden [Her85].

4.4 Experimenteller Aufbau

Um die Ultrakurzzeitdynamik von Halbleiterquantenpunkten untersuchen zu können, wird das Nahfeldmikroskop mit einem experimentellen Aufbau für fs-Anrege-/Abtast-Spektroskopie kombiniert.

Abb. 4.18 zeigt schematisch den Versuchsaufbau. Ausgangspunkt ist ein Ar^{2+} -Laser gepumpter Ti:Saphir-Oszillator mit Pulsdauern von 30 fs und einer Ausgangsleistung von 250 mW. Zur Pulscharakterisierung wurde ein Teil des Laserlichts von einer Keilplatte abgetrennt und auf einen optischen Vielkanalanalysator, einen Autokorrelator und eine schnelle Photodiode mit Anstiegszeiten < 1 ns gebracht (nicht in Abb. 4.18 dargestellt, vgl. Kap.4.3.2). Nach der Verringerung der Strahldivergenz durch ein Teleskop, wird der Strahl im Verhältnis 70:30 in einen Anrege- und einen Abtastimpuls aufgeteilt. Nach der Aufspaltung in einen Anrege- und

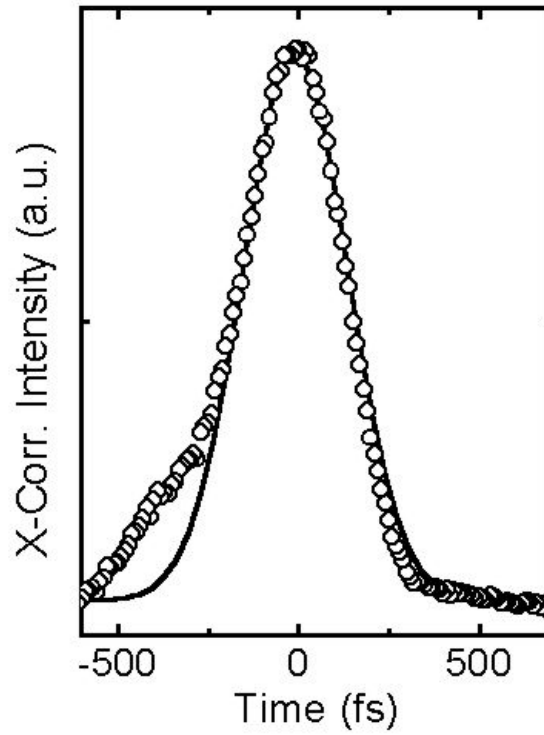


Abbildung 4.17: Kreuzkorrelation zwischen Anrege- und Abtastimpuls nach Propagation von 136 cm Glasfaser: eine Halbwertsbreite von 300 fs lässt auf Impulsdauern von ca. 200 fs schließen

Abtastimpuls werden die Pulse unabhängig voneinander sowohl spektral als auch zeitlich in einem kombinierten Gitterkompressor/Shaperaufbau geformt um die Dispersion der nachfolgenden Komponenten zu kompensieren (vgl. Abs. 4.3.3).

Der Abtastimpuls wird im Folgenden direkt über einen optischen Faserkoppler (Newport) in eine optische Glasfaser eingekoppelt an deren Ende sich eine geätzte unbedampfte Spitze als Nahfeldsonde befindet. Der Anregeimpuls durchläuft eine variable Verzögerungsstrecke und wird dann um eine möglichst hohe räumliche Auflösung zu erreichen ebenfalls in die selbe Glasfaser eingekoppelt. Das von der Probe reflektierte Licht wird durch die Nahfeldsonde wieder eingesammelt und mit einem Strahlteiler von den einfallenden Strahlen abgetrennt. Detektiert wird das gesamte Spektrum des von der Probe reflektierten Lichtes des Abtastimpulses mit einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten CCD-Kamera (Princeton Instruments, 1340×100 Pixel), nachdem es mit einem $f = 0.5$ m Monochromator (Princeton Instruments, Linienzahl: 1200 Linien/mm) spektral zerlegt wurde.

Bei diesen Messungen wurde davon abgesehen, dass Licht mit einem Lichtzerhacker zu modulieren. Zur Bestimmung der nichtlinearen Reflektivitätsänderung wurden 3 Spektren zu unterschiedlichen Zeiten aufgenommen, danach ein Referenzspektrum bei einer Zeit $\Delta t = -60$ ps. Die Bestimmung der nichtlinearen Reflektivitätsänderung erfolgt dann durch Division:

$$\frac{\Delta R(\omega, \Delta t)}{R_0(\omega)} = \frac{R(\omega, \Delta t)}{R(\omega, \Delta t = -60ps)} - 1 \quad (4.3)$$

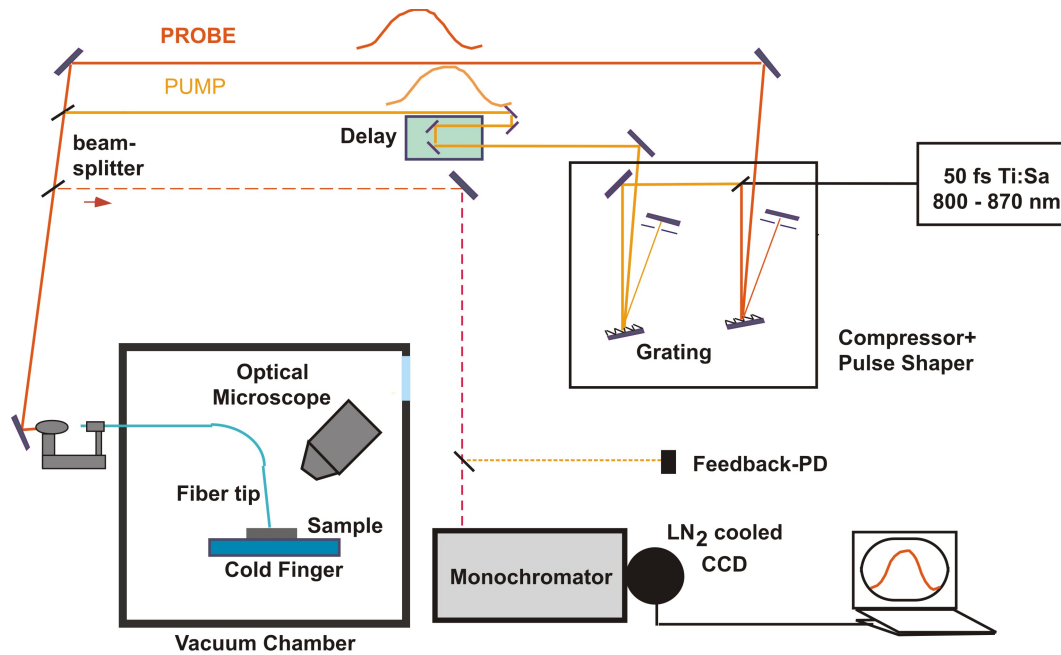


Abbildung 4.18: Schematischer Versuchsaufbau für fs-Nahfeldmessungen bei 10 K. Sowohl der Anrege als auch der Abtastimpuls wird durch die Nahfeldsonde transmittiert. Die Detektion erfolgt ebenfalls durch Transmission durch die Nahfeldapertur.

Die Abstandsregelkontrolle erfolgt über die „optische“ Rückkopplung (vgl. Abs. 4.2.2). So wurde sichergestellt, dass mechanische Wechselwirkungen keine Auswirkungen auf optische Eigenschaften einzelner Quantenpunkte haben.

4.4.1 Nachweisempfindlichkeit

Aufgrund der geringen eingesetzten Abtastimpulsleistungen weniger 10 nW stellt sich die Frage nach der Empfindlichkeit der Experimente. Diese bestimmt welche Reflektivitätsänderungen noch detektierbar sind, bzw. welche Meßzeit notwendig ist, um ein ausreichendes Signal-zu-Rausch-Verhältnis von $>10:1$ zu erhalten.

Zahlreiche Rauschquellen existieren. Neben dem Photonenrauschen (Schrot-Rauschen), zählen Laserrauschen, Änderungen des Abstands zwischen Spitze und Probe, sowie Ausle-
serauschen zu den Quellen, die die Nachweisempfindlichkeit limitieren.

Schrot-Rauschen

Die fundamentale Begrenzung der Detektionsempfindlichkeit ist durch das Photonenrauschen (Schrot-Rauschen) bestimmt. Schrot-Rauschen ist assoziiert mit dem zufälligen Auftreffen eines Photons auf dem Detektor. Dessen Amplitude σ_{shot} ist über die Gesamtanzahl der detektierten Photonen N bestimmt. Dabei ist (z. B. [Man95]):

$$\sigma_{shot,R}(N) = \sqrt{N}. \quad (4.4)$$

Für die Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ ist zu berücksichtigen, dass zwei Spektren aufgenommen werden, die gegeneinander dividiert werden. Dies vermindert die minimal mögliche

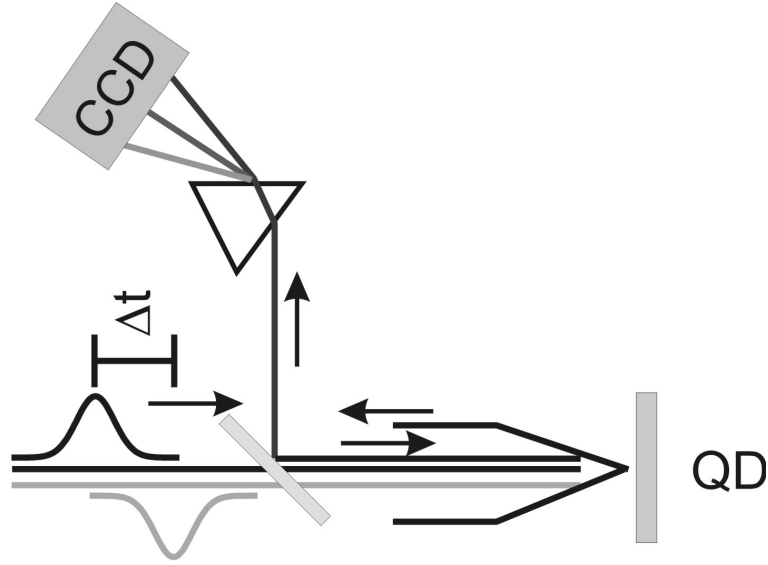


Abbildung 4.19: Schema der Meßgeometrie für fs-Nahfeldmessungen bei 10 K. Beide Impulse werden durch die Nahfeldsonde geleitet. Das reflektierte Licht des Abtastimpuls wird mit der gleichen Nahfeldsonde aufgesammelt, von den einfallenden Impulsen getrennt und spektral separiert. Eine CCD-Kamera detektiert die einzelnen spektralen Komponenten.

Empfindlichkeit der Experimente um einen Faktor $\sqrt{2}$:

$$\sigma_{shot,\Delta R}(N) = \sqrt{2N}. \quad (4.5)$$

Es wird daher eine genaue Kenntnis der Anzahl an detektierten Photonen benötigt.

Zur theoretischen Abschätzung minimal möglicher Rauschamplitude werden die Transmissionen bzw. Effizienzen aller Komponenten im Detektionspfad berücksichtigt. Es sind dies neben 2 Strahlteiler (Transmission (T): 50%), 1 Linse (T: 90%), das Monochromatorgitter (Effizienz $\leq 70\%$) und der Detektor (Quantenausbeute: 85%) [Sci00]. Zusätzlich werden pro gezähltem Elektron 2 Photonen benötigt. Die vom Detektor detektierte Intensität I_d beträgt unter Berücksichtigung aller Komponenten sowie einer mittleren Aufsammeleffizienz der Spitze von 2.5%: $I_d \approx 3.2 \cdot 10^{-3} \cdot I_0$ der eingekoppelten Intensität I_0 .

Dies bedeutet für einen 60 nW starken Abtastimpuls der Energie 1.65 eV, dass ungefähr 190 pW - entsprechend einer Photonenrate von $7 \cdot 10^8$ Photonen/s detektiert werden können. Durch die hohe spektrale Auflösung des Monochromators wird diese Gesamtintensität auf mehrere Hundert Einzeldetektoren (Pixel) verteilt. Bei einer spektralen Halbwertsbreite von 30 meV sind dies etwa 500 Pixel der CCD-Kamera. Betrachtet man einen gauß-förmigen Abtastimpuls und berücksichtigt man noch, dass je Count 2 Elektronen benötigt werden, wird theoretisch eine maximal erreichbare Zählrate von $6.7 \cdot 10^5$ Counts/(s Kanal) bestimmt. Dies bedeutet ein minimales Schrot-Rauschen von $\sigma_{shot,\Delta R}(t)/N \approx 1.7 \cdot 10^{-3}/\sqrt{t}$ (t in Sekunden).

In den Experimenten wird bei einer Integrationszeit von 50 ms maximal eine Zählrate von ungefähr 20000 Counts/Messung erreicht. Das heißt, dass 60 % der maximal zu erwartenden Photonen gezählt werden. Pro Mittelung werden 100 Einzelmessungen durchgeführt. Das für eine Mittelung zu erwartende minimale Schrot-Rauschen beträgt folglich: $\sigma_{shot,\Delta R}/N \simeq 7 \cdot 10^{-4}$.

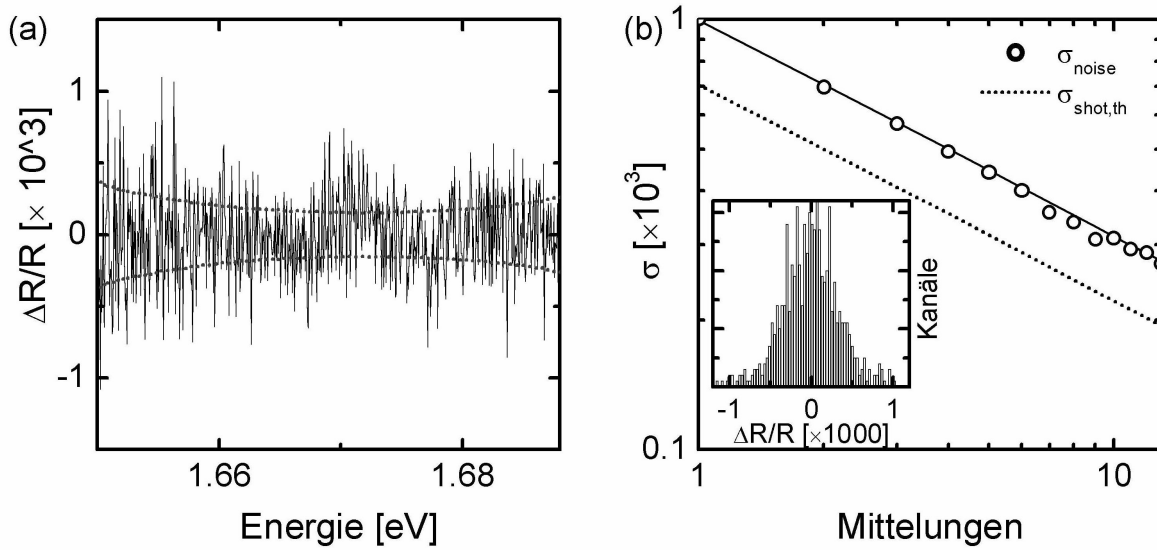


Abbildung 4.20: Detektionsempfindlichkeit des Messaufbaus. Die Experimente wurden bei Raumtemperatur an der Mehrachquantenfilmprobe durchgeführt. Pro Messung wurden 100 Einzelmessungen akkumuliert, deren Maximalamplitude jeweils 20000 detektierte Photonen beträgt. (a) Die Rauschamplitude des $\Delta R/R$ -Spektrums liegt größtenteils innerhalb der theoretisch bestimmten Amplitude des Schrot-Rauschens (\cdots). (b) Die Standardabweichung σ_{shot} in Abhängigkeit der Mittelung wird über die Anpassung der Histogramme (inset für 10 Mittelungen) an eine Gauß-Funktion bestimmt. σ_{noise} zeigt deutlich die Abnahme des statistischen Rauschens mit Zunahme der Mittelungen (\circ). Der Vergleich mit der theoretischen Grenze des Schrot-Rauschens (\cdots), zeigt das im Experiment die Rauschamplitude etwa 1.5-Mal größer als die theoretisch bestimmte Schrot-Rauschen ist.

Zur experimentellen Bestimmung der Rauschamplitude wird ein Testexperiment bei Raumtemperatur durchgeführt. Es werden die experimentellen Parameter wie oben beschrieben gewählt. Es wird eine unterschiedliche Anzahl an Einzelmessungen aufsummiert. Abb. 4.20(a) zeigt am Beispiel eines auf 1.67 eV zentrierten Abtastimpuls die bestimmte Reflektivitätsänderung $\Delta R(\omega)/R$. Die Standardabweichung der Amplitude σ_{noise} wird über die Erstellung eines Histogramms und die Anpassung einer Gauß-Funktion an dieses bestimmt (Abb. 4.20(b)(inset)). Deutlich zeigt sich eine Abnahme der Rauschamplitude mit wachsender Anzahl der Mittelungen. Es wird eine Standardabweichung bestimmt, das bis auf einen Faktor ≤ 1.5 durch das Schrot-Rauschen ($-$) gegeben ist. Bei 10 Mittelungen (entspricht 1000 Einzelmessungen) kann eine für die Durchführung der Experimente ausreichende Standardabweichung der Amplitude von $\sigma_{\Delta R/R} \simeq 3 \cdot 10^{-4} \Delta R/R_0$ erreicht werden.

Dies zeigt, dass die Detektionsempfindlichkeit des experimentellen Aufbaus nahezu am Limit des Schrot-Rauschens liegt. Die bereits oben erwähnten Rauschquellen tragen maßgeblich zur Erhöhung der Rauschamplitude bei. Vorwiegend Laserrauschen und Positionsrauschen sind dabei zu beachten. Hierzu wurden allerdings keine experimentellen Studien durchgeführt. Die Amplituden dieser Rauschquellen sind allerdings derart, dass sie das detektierte Rauschen um maximal einen Faktor ≤ 1.5 erhöhen.

4.4.2 Bestimmung des Zeitnullpunktes:

Ein für fs-Experimente extrem wichtiger Parameter ist die Bestimmung des Zeitnullpunktes, d.h. die Bestimmung des Punktes vollständigen Überlapps zwischen Anrege- und Abtastimpuls. In Standard fs-Experimenten existieren mehrere Möglichkeiten: es können entweder mit Autokorrelationsmethoden Kreuzkorrelationen gemessen werden, die eine genaue Festlegung des maximalen Überlapps ermöglichen [Die96]. Es können auch Halbleiterproben wie z.B. GaAs-bulk als Referenzprobe eingesetzt werden. GaAs zeichnet sich in nichtspektral aufgelösten Pump-Probe Messungen mit resonanter Anregung durch ultraschnelle nahezu stufenförmige Anstiege aus. Die Anstiegszeit ist einzig bestimmt durch die Zeitcharakteristik der Impulse [Sha92].

Bei spektral aufgelösten fs-Nahfeldexperimenten ist die Bestimmung des Zeitnullpunktes nicht trivial. Gerade bei 10 K spalten sich das Spektrum in zahlreiche spektral scharfe Resonanzen auf, deren Anstiegszeiten mehrere Pikoekunden betragen.

Um dennoch den maximalen Impulsüberlapp bestimmen zu können wurde deshalb eine spektroskopische Methode eingesetzt. Dabei spielt eine entscheidende Rolle, dass sich Zeitunterschiede zwischen Anrege- und Abtastimpuls beim Interferenzspektrum als Oszillationen bemerkbar machen, deren Amplitude und Periode von der Verzögerungszeit abhängt [Muk95]. Diese Oszillationen auf der mit einer CCD-Kamera detektierten Intensität können gezielt ausgenutzt werden um den Punkt maximalen Überlapps zu bestimmen, da die Oszillationsperiode mit zunehmendem zeitlichen Abstand zwischen den Impulsen stetig abnimmt. So wird vor jedem Experiment der Nullpunkt derart eingestellt, dass die Oszillationsperiode maximal wird und nahezu im Signalrauschen verschwindet. Derart kann der zeitliche Überlapp mit einer Genauigkeit von 50 fs bestimmt werden, wie sich an Anregeimpuls-induzierten Änderungen der Reflektivität des Quantenfilmkontinuums bestätigt wurde (vgl. Abs.6.2.5).

Kapitel 5

Charakterisierung der Mehrfachquantenfilmprobe - PL- und Autokorrelationsspektroskopie

Um einen Einblick in die charakteristischen Eigenschaften der Mehrfachquantenfilmprobe zu bekommen, wurden zunächst deren linearen optischen Eigenschaften untersucht. Dazu wurden neben orts aufgelösten Nahfeld-Photolumineszenzspektren auch Photolumineszenz-Autokorrelationsspektren analysiert. Diese Experimente geben einen Einblick in die statistischen Eigenschaften des Unordnungspotentials dieser Quantenfilme. Weiterhin liefern sie Informationen über die Bildung von Monolageninseln während des Wachstums und es kann die mittlere Ausdehnung der exzitonischen Schwerpunkts-Wellenfunktionen abgeschätzt werden.

In diesem Kapitel werden wegen der Bedeutung für die zeitaufgelösten Messungen vor allem die Eigenschaften des 5.1 nm dicken Quantenfilms **D** beschrieben.

5.1 Lineare optische Eigenschaften der MQW-Probe — PL - Emissionsspektroskopie

Zur ersten Charakterisierung wurden für sämtliche Quantenfilme der Mehrfachquantenfilmprobe Nahfeld-PL-Emissionsspektren bei einer Proben temperatur $T = 12$ K aufgenommen. Zur Anregung diente ein HeNe-Laser der Energie 1.959 eV. Die Messungen wurden in *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie durchgeführt, d.h. der Laserstrahl wurde in die Glasfaser eingekoppelt, durch die Nahfeldsonde transmittiert und die PL-Emission durch die gleiche Nahfeldsonde wieder aufgesammelt (vgl. Abs. 3.2.3). Die Messungen wurden mit den in Abs. 4.2.1 beschriebenen unbedampften Nahfeldsonden durchgeführt. Dadurch konnten sehr niedrige Anregungsleistungen zwischen 0.3 bis 1000 nW eingesetzt werden. Bei einer Anregungsleistung von 1 nW existieren im Durchschnitt weniger als 0.02 Elektron-Loch-Paare in einem einzelnen Quantenfilm.

Nach der Aufsammlung wird die PL-Emission mit einem $f = 0.5$ m Monochromator mit einer spektralen Auflösung von $60 \mu\text{eV}$ in die unterschiedlichen Frequenzkomponenten aufgespalten und mit einer LN_2 -gekühlten CCD-Kamera detektiert.

Abb. 5.1 zeigt typische Nahfeld-PL-Spektren unterschiedlicher Quantenfilme der Probe. Für

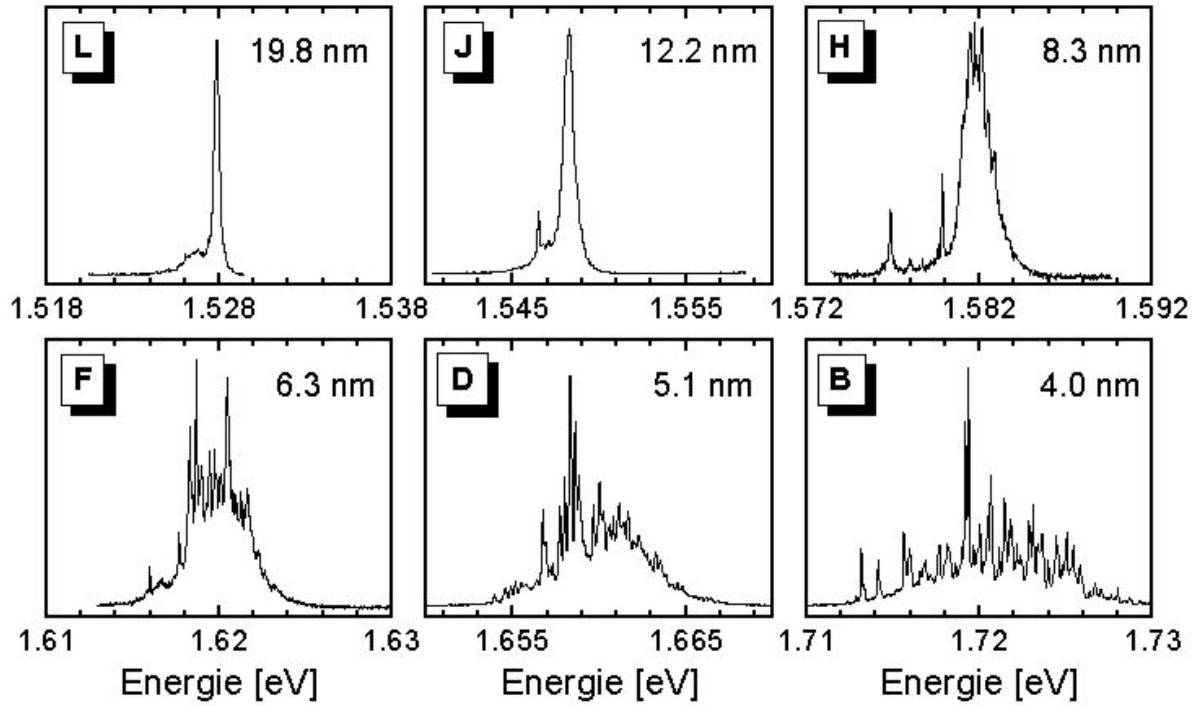


Abbildung 5.1: Typische Nahfeld-PL-Emissionsspektren von 6 unterschiedlichen Quantenfilmen der Mehrfachquantenfilmstruktur im *Anregungs-/Aufsammel*-Modus. Die Anregung erfolgte bei 1.959 eV mit einer Anregeleistung von 100 nW. Die PL-Emission zeigt deutlich den Übergang von einer nahezu homogenen Emissionslinie der dicken Quantenfilme **H-L** zu einer inhomogen verbreiterten Emissionslinie dünner Quantenfilme **B-F**. Gleichzeitig zu der zunehmenden Linienbreite werden scharfe Emissionslinien beobachtet, die lokalisierten Exzitonzuständen zugeschrieben werden können.

die Quantenfilme mit Dicken oberhalb 10 nm werden lorentzförmige, nahezu homogen verbreiterte Emissionslinien detektiert. So beträgt die Halbwertsbreite der PL-Emission des Quantenfilms **J** 0.23 meV bzw. für den Film **L** 0.51 meV. Neben dieser nahezu homogenen Linie werden keine spektral scharfen Resonanzen lokalisierter Exzitonen in diesen Quantenfilmen beobachtet.

Mit abnehmender Dicke der Quantenfilme weisen die PL-Emissionen eine inhomogen verbreiterte Untergrundemission mit zunehmender Linienbreite sowie eine Anzahl an spektral schmalbandiger Emissionslinien auf (Abb. 5.1, Abb. 5.2). Dabei kann für die Linienform des Kontinuums ein Übergang von lorentzförmiger zu gaußförmiger Linie beobachtet werden (vgl. Abb. 5.1 J,H,F). So wird für den Quantenfilm **D** eine gaußförmige Emissionslinie mit einer Halbwertslinienbreite von ungefähr 4.6 meV beobachtet. Gleichzeitig mit dem Übergang von lorentzförmiger zu gaußförmiger Emissionslinie treten vermehrt spektral scharfe Emissionslinien in den Nahfeldspektren auf. Diese scharfen Emissionslinien, deren Linienbreite ungefähr 60 μ eV beträgt, können lokalisierten Exzitonen zugeschrieben werden (vgl. Abs. 3.1.2). Sie dominieren das Gesamtspektrum für Quantenfilmdicken unterhalb 7 nm.

Die Untersuchung der Linienbreite in Abhängigkeit von der Quantenfilmdicke gibt einen ersten Aufschluss über die Unordnungseigenschaften der Struktur. Abb. 5.2 (o) zeigt die Linienbreite $\sigma = FWHM/\sqrt{8 \cdot \ln 2}$ der unterschiedlichen Quantenfilme. Für den 19.8 nm

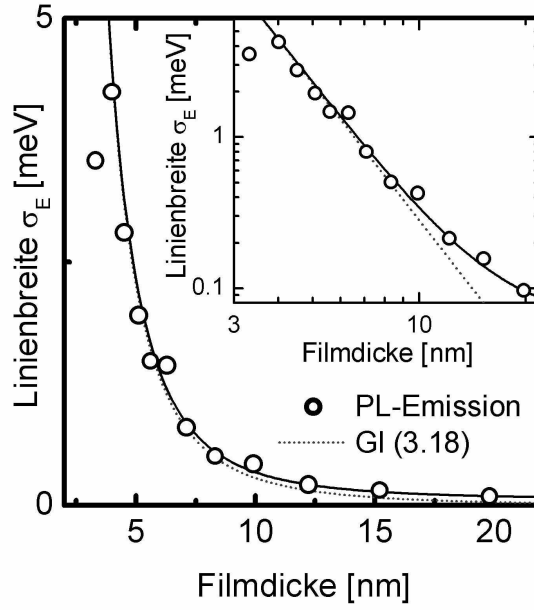


Abbildung 5.2: Die PL-Emissionslinienbreite in Abhängigkeit der Quantenfilmdicke (\circ) zeigt eine deutliche Zunahme der Linienbreite mit abnehmender Filmdicke. Der Vergleich mit den theoretischen Erwartung für einen unendlich tiefen Potentialtopf (–, vgl. Gln. 3.18) unter Berücksichtigung einer homogenen Linienbreite $\sigma_0 \approx 60 \mu\text{eV}$ legt eine Monolagenfluktuation von $\Delta L_z \simeq 0.3 \text{ ML}$ nahe (\cdots) Linienbreite ohne Berücksichtigung der homogenen Linienbreite). (Inset) logarithmische Darstellung.

dicken Quantenfilm beträgt die Linienbreite σ ungefähr $100 \mu\text{eV}$. Mit Abnahme der Quantenfilmdicke zeigt sich deutlich eine sehr starke Zunahme der Linienbreite. Sofern Dickenfluktuationen des Quantenfilms die Ursache für die inhomogenen Verbreiterung der PL-Spektren darstellen, lässt sich die Linienbreite abschätzen als (vgl. Abs. 3.1.2, Gln. 3.18)

$$\sigma_E = \Delta L_z \frac{\hbar^2 \pi^2}{M} L_z^{-3} + \sigma_0,$$

Hierbei wird zusätzlich der Beitrag der homogenen Linienbreite σ_0 berücksichtigt (Abb. 5.6 (–)). Durch Anpassung der experimentellen Ergebnisse an dieses Modell, lässt sich die mittlere Dickenfluktuation ΔL bestimmen. Dabei wurde eine Exzitonenmasse von $M = 0.25 \cdot m_0$ angenommen. Eine sehr gute Übereinstimmung des Modells mit den experimentell ermittelten Linienbreiten wird für $\Delta L_z \simeq 0.11 \text{ nm} \simeq 0.3 \text{ ML}$ und $\sigma_0 = 60 \mu\text{eV}$ gefunden (Abb. 5.2 (–)).

Der Beitrag der homogenen Linienbreite σ_0 wird gerade für Quantenfilme mit Dicken oberhalb von 10 nm deutlich. So zeigen die experimentell bestimmten Linienbreiten dieser Quantenfilme eine deutliche Abweichung zu den theoretischen Vorhersagen, sofern ausschliesslich Monolagenfluktuationen berücksichtigt werden, die homogene Linienbreite allerdings nicht eingeschlossen wird ($\sigma_0 = 0$, Abb. 5.2 (\cdots)).

Der Vergleich der rein inhomogen verbreiterten Anpassung ($\sigma_0 = 0$, Abb. 5.2 (\cdots)) macht deutlich, dass die homogene Linienverbreiterung $\sigma_0 \leq 60 \mu\text{eV}$ maßgeblich die Linienbreite der Quantenfilme mit einer Dicke oberhalb 10 nm bestimmt, während für Dicken unterhalb 10 nm die inhomogene Linienverbreiterung das PL-Spektrum dominiert.

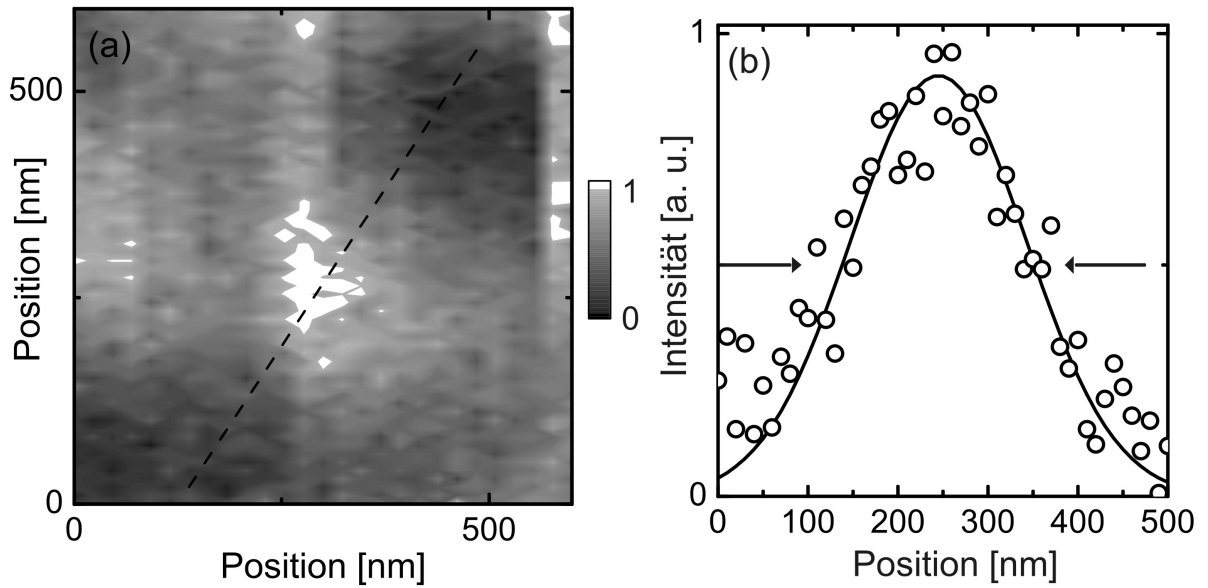


Abbildung 5.3: Auflösung des PL-Experiments am Beispiel des Quantenfilms **D**. (a) Räumliche Verteilung der PL-Emission bei einer Detektionsenergie von $E_{det} = 1.6583$ eV. (b) Der vertikale Schnitt durch das Emissionsspektrum einer lokalisierten Emissionsresonanz legt eine räumliche Auflösung von 220 nm nahe.

Bestimmung der räumlichen Auflösung

Eine wichtige Größe für die folgenden Femtosekunden-Experimente ist die Anregungsdichte. Zu deren Bestimmung ist eine möglichst genaue Abschätzung der räumlich-optischen Auflösung unerlässlich. Sie lässt sich am einfachsten über das räumliche PL-Emissionsprofil eines einzelnen lokalisierten Zustands gewinnen.

Zu diesem Zweck wird von der Probe in *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie eine Abbildung der spektral aufgelösten PL-Emission über einen Bereich von 600×600 nm² erstellt. Abb. 5.3 zeigt die PL-Emission des Quantenfilms **D** bei der Detektionsenergie $E_{det} = 1.6583$ eV. Deutlich sichtbar ist das räumliche Profil der PL-Emission einer einzelnen lokalisierten Exzitonenresonanz. Querschnitte durch dieses Profil ergeben eine Obergrenze für das Auflösungsvermögen. Abb. 5.3 (b) zeigt einen derartigen Schnitt. Ein gaußförmiges PL-Emissionsprofil mit einer Halbwertsbreite von etwa 235 nm wird bestimmt.

Zur exakten Bestimmung der räumlich-optischen Auflösung muß die endliche Quantenpunktausdehnung berücksichtigt werden. Aus den später diskutierten Autokorrelationsexperimenten kann diese durch einen Quantenpunktdurchmesser $d \simeq 45$ nm abgeschätzt werden (vgl. Abs. 5.2). Legt man diesen Quantenpunktdurchmesser von 45 nm zugrunde, beträgt die räumlich-optische Auflösung in 120 nm Tiefe 220 nm¹. Dies ist unwesentlich schlechter, als die für Apertursonden theoretisch erreichbare maximale räumlich-optische Auflösung, die in dieser Tiefe $\sqrt{2}z \simeq 175$ nm beträgt (vgl. Abs. 3.2.2, Abb. 3.6).

¹120 nm entspricht der Tiefe, in der der Quantenfilm **D** vergraben ist.

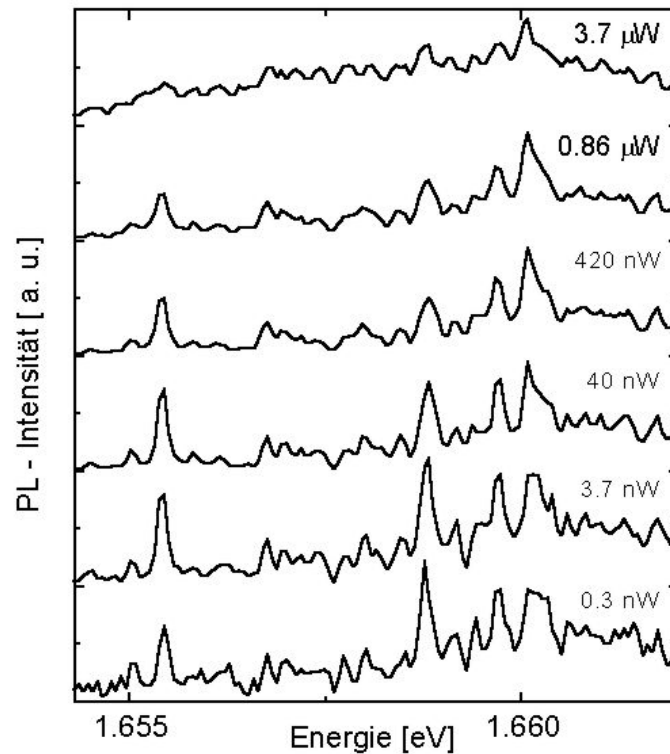


Abbildung 5.4: Intensitätsabhängigkeit der PL-Emission des Quantenfilms **D** für Anregungsintensitäten zwischen 0.3 und 3700 nW. Die einzelnen scharfen Resonanzen lokalisierter Exzitonen sind über einen weiten Intensitätsbereich bis 1000 nW sichtbar. Bei noch höheren Anregungsintensitäten dominiert die inhomogen verbreiterte Kontinuumsmission das Spektrum.

Biexzitonenzustände - Intensitätsabhängige PL-Emission

Zur weiteren Charakterisierung der Probenstruktur ist es sinnvoll, die Intensitätsabhängigkeit der PL-Emission zu untersuchen. So bietet die Variation der Anregungsintensität neben der Bestimmung der Sättigungsemission einzelner lokalisierter Exzitonen auch die Möglichkeit, gezielt Biexzitonenzustände aufzuspüren und zu detektieren. Biexzitonen, also gebundene Zustände ähnlich dem Wasserstoffmolekül treten auf, wenn die Anregungsdichte und damit die Exzitonendichte genügend hoch ist. Da Biexzitonenzustände in Quantenfilmen vorwiegend aufgrund der Zweiphotonenabsorption gebildet werden [Kli96], sie also folglich einem nichtlinearen Prozess unterliegen, wird für sie im Gegensatz zu exzitonischen Übergängen eine quadratische Anregungsintensitätsabhängigkeit der PL-Emission erwartet [Gin99a]. Diese nichtlineare Intensitätsabhängigkeit konnte auch in zahlreichen PL-Experimenten bestätigt werden [Bru94, Gin99b, Gin99a, Bac99].

Zur Bestimmung der Anregungsintensitätsabhängigkeit wurden für die unterschiedlichen Quantenfilme PL-Spektren unterschiedlicher Anregungsleistung aufgenommen. Abb. 5.4 zeigt 6 PL-Emissionsspektren des Quantenfilms **D** mit Anregungsleistungen zwischen 0.3 - 3700 nW. Bei Anregungsintensitäten unterhalb 10 nW zeigen sich einige wenige schmale Resonanzen, die überlagert sind von einem inhomogen verbreiterten Kontinuum. Die Kontinuumsmission ist auch bei Anregungsintensitäten von 0.3 nW noch detektierbar. Durch Erhöhung der Anregungsintensität ändert sich das Verhältnis der Emission zwischen

scharfen PL-Linien und dem Kontinuum. Die Anzahl energetisch scharfer Resonanzen bleibt jedoch konstant. Weder verschwinden einzelne Resonanzen, noch treten bei Erhöhung der Anregungsintensität zusätzliche Resonanzen auf. Erst bei Anregungsintensitäten oberhalb 1000 nW sind die scharfen Emissionsresonanzen kaum mehr detektierbar. Die Emission der inhomogen verbreiterten Kontinuumszustände dominiert das Spektrum.

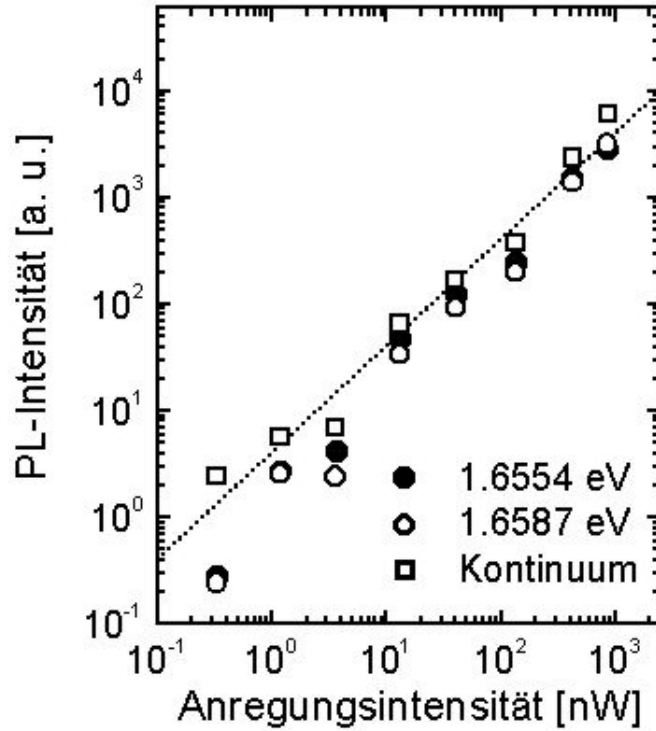


Abbildung 5.5: Intensitätsabhängigkeit der PL-Emission einzelner Quantenpunkte des Quantenfilms **D** und des Kontinuums. Für eine cw-Anregeleistung in einem Bereich $\leq 1 \mu\text{W}$ wird eine näherungsweise lineare Intensitätsabhängigkeit für einzelne Quantenpunkte und das breitbandige Kontinuum gefunden. Hinweise auf einen quadratischen Anstieg der PL-Emission, wie es für Biexzitonen typisch ist, existieren nicht.

Betrachtet man die Intensitätsabhängigkeit einzelner Quantenpunkte (Abb. 5.5 am Beispiel des QW **D**), so zeigt sich für Anregeleistungen unterhalb von $1 \mu\text{W}$ eine lineare Intensitätsabhängigkeit der PL-Emission. Dieser lineare Anstieg ist typisch für die Intensitätsabhängigkeit der Emission aus Exzitonzuständen. Eine Sättigung dieser Emission wird erst für Anregeintensitäten oberhalb $1 \mu\text{W}$ beobachtet. Quadratische Anstiege, die für Biexzitonenresonanzen zu erwarten sind, werden **nicht** gefunden. Daher resultiert aus den PL-Experimenten kein Hinweis auf Biexzitonzustände. Vermutlich ist bei der untersuchten Probe auch die hier erreichte Auflösung von 235 nm noch nicht hinreichend, um die Anzahl der beobachteten Emissionszustände soweit zu vereinzeln, dass die schwache Biexzitonen-Emission klar von dem Emissionsuntergrund unterschieden werden kann.

Monolagenaufspaltung

Bilden sich infolge des Wachstums im Quantenfilm Inseln, deren Dicke sich um eine Monolage unterscheidet, so wird oftmals in Photolumineszenz das Auftreten einer Emission beider Monolagen beobachtet [Gam96a, Leo00]. Diese Monolagenaufspaltung wurde derart interpretiert, dass die Filmdickenfluktuation eine Längenskala besitzt, die groß ist im Verhältnis zur Ausdehnung der Exzitonenschwerpunktswellenfunktion. Bei einer hinreichenden Größe der Inseln können Ladungsträger in den Bereichen dünnerer Schichtdicke lokalisieren und strahlend rekombinieren. Die PL-Emission einer zweiten Monolage tritt auf. Sie wurde an dünnen GaAs(100)-Quantenfilmen bereits mehrfach beobachtet [Jah96a, Gam96a].

Entscheidenden Einfluss hierfür besitzt die Form und Art der Unordnung, die die Ausdehnung der Exzitonewellenfunktion bestimmt.

Besitzt der Quantenfilm ein Unordnungspotential, das zu einer starken Lokalisierung der Exzitonenzustände auch innerhalb der „dünneren“ Inseln einer Dicke von $N-1$ Monolagen führt, kann die Relaxation aus diesen in Inseln der Dicke N -Monolagen auch bei relativ geringen Inselausdehnungen unterdrückt werden. Folglich lokalisieren Exzitonen in Quantenpunkten beider Monolagen. Deren Lebensdauer ist hauptsächlich durch strahlende Rekombination und nicht mehr durch die Relaxation bestimmt. In diesem Grenzfall kann die Emissionsintensität bei tiefen Temperaturen als Maß für das Verhältnis der Flächendichten A_{N-1} (A_N) angesehen werden [Jah96a].

Im anderen Grenzfall besitzt der Quantenfilm ein statistisches Potential, dessen Amplitude klein im Vergleich zur Monolagenaufspaltung ist ($\Delta\sigma \ll \Delta E_{ML}$). Eine schwache Exzitonelokalisierung mit großen Lokalisierungslängen existiert. Die Dynamik der unkorrelierten Exziton Relaxation bestimmt die Lebensdauer der Exzitonenzustände in den „dünnen“ Wachstumsinseln. In diesem Grenzfall folgt die Besetzung der energetisch höheren Monolage der einer Besetzung im thermischen Gleichgewicht:

$$\frac{I_{N-1}}{I_N} = \frac{A_{N-1}}{A_N} \times \exp\left(\frac{-(E_{N-1} - E_N)}{k_B T}\right)$$

Für tiefe Temperaturen von ungefähr 12 K existiert nahezu keine Besetzung der energetisch höheren Monolage. Die PL-Emission der Monolage der Dicke $N-1$ ist sehr viel geringer als diejenige der Dicke N . Sie kann kaum mehr detektiert werden.

Bei der Durchführung der Nahfeld PL-Experimente zeigen sich einige wenige Anzeichen einer Monolagenaufspaltung. So werden in PL-Nahfeldspektren bei der Erstellung des räumlichen PL-Profiles an einigen wenigen Positionen einzelne scharfe Resonanzen sichtbar, deren Emissionsenergie deutlich außerhalb der inhomogenen Verbreiterung der Fernfeld-PL-Emission liegt. In Abb. 5.6 (b) sind zwei derartige Resonanzen dargestellt. Deren Emissionsenergie ist gegenüber derjenigen des Quantenfilms **E** um ca. 9 meV zu positiven Energien verschoben. Durch Mittelung der Nahfeldspektren dieser Landkarte kann ein quasi-Fernfeld-Spektrum generiert werden (Abb. 5.6 (a)). Dieses Fernfeldspektrum zeigt zwei starke inhomogen verbreiterte Linien der Quantenfilme **D** und **E** mit 18 ML bzw. 20 ML Dicke. Eine Emission aus Bereichen mit 19 ML Dicke wird ebenfalls detektiert. Die PL-Intensität aus dieser Monolage ist allerdings ungefähr 2000-Mal geringer als die Hauptemission des Quantenfilms **E**. Dies entspricht in etwa der thermischen Gleichgewichtsemission bei 12 K sofern eine Flächenverteilung $\frac{A_{N-1}}{A_N} \approx 50\%$ angenommen wird².

²Die thermische Gleichgewichtsemission ist in diesem Temperaturbereich sehr sensitiv auf die tatsächliche Temperatur. Da diese nicht exakt bestimmt werden kann, sind 50 % nur eine sehr grobe Abschätzung.

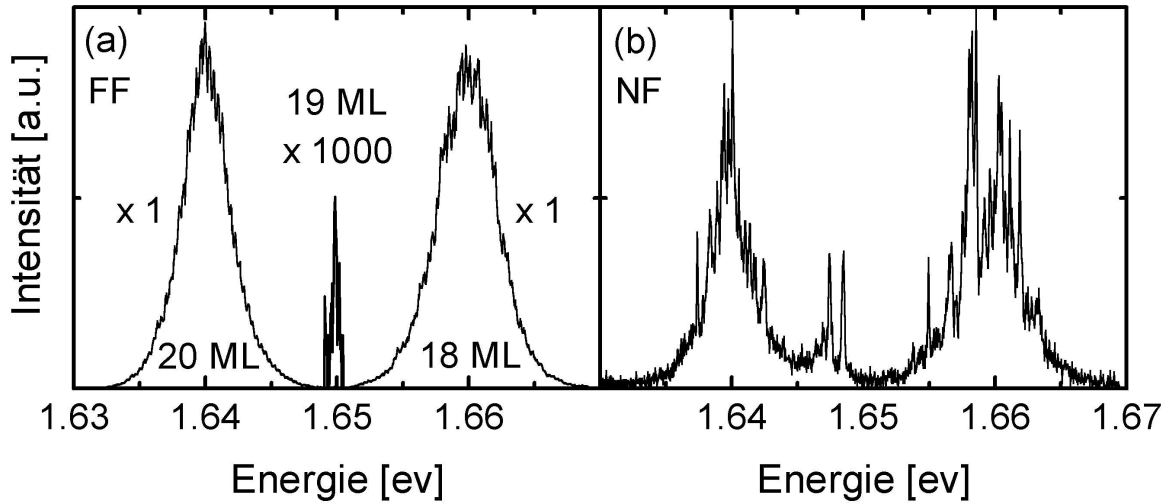


Abbildung 5.6: Auftreten der Monolagenaufspaltung am Beispiel des Quantenfilms **E**. (a) Das über 900 Spektren gemittelte Fernfeldspektrum zeigt neben den stark inhomogen verbreiterten Emissionslinien der Quantenfilme **D** (18 ML) und **E** (20 ML) eine kaum sichtbare PL-Emission aus Gebieten mit einer Schichtdicke von 19 ML. Die Emission aus den Gebieten mit 20 ML Dicke ist gegenüber der Emission aus Bereichen einer Dicke von 19 ML ungefähr 3000-fach stärker. (b) Nahfeldspektrum: einzelne scharfe Resonanzen der Emission lokalisierter Zustände der 19 ML-Schicht werden sichtbar.

In den später dargestellten Ergebnisse aus fs-Experimenten zeigt sich eine nichtlineare Reflektivitätsänderung aus Bereichen einer Dicke von 19 ML (vgl. Abs. 6.2.5). Die dabei detektierte Reflektivitätsänderung von $\approx 1 \cdot 10^{-3}$ ist in der gleichen Größenordnung wie $\Delta R/R_0$ der Quantenfilme **D** und **E**. Dies bestätigt, dass der vorwiegende Anteil der Emission aus Bereichen des Quantenfilms **E** mit einer um eine Monolage reduzierten Dicke resultiert.

Aufgrund der Monolagenfluktuation mit einer Potentialamplitude $\Delta L_z \simeq 0.3$ existieren ebenfalls Bereiche mit einer Dicke von $N + 1$ -Monolagen. Aus diesen wird nahezu keine Emission detektiert. So haben Bereiche der Dicke $N + 1$ -Monolagen des Quantenfilms **D** ebenfalls eine Dicke von 19 Monolagen. Die Emission aus diesen Bereichen beträgt maximal 0.05%. Eine Obergrenze für das Flächenverhältnis kann angegeben werden unter der Annahme, daß keine Thermalisierung in diese Monolage stattfindet. So ist $\frac{A_{N+1}}{A_N} \leq 0.05\%$. Legt man eine gaußförmige Dickenverteilung mit einer Dickenfluktuation $\Delta L_z \simeq 0.3$ ML zugrunde ($A(N) = \exp[-(N - N_0)^2/(2(\Delta L_z)^2)]$), kann eine derart niedrige Flächendichte nur erreicht werden, falls die durchschnittliche Dicke des Quantenfilms **D**: $N_0 \lesssim 17.8$ Monolagen beträgt. Ähnliche Monolagenaufspaltungsintensitäten lassen sich auch für die anderen Quantenfilm bestimmen. Es kann also folglich davon ausgegangen werden, dass die Quantenfilme vorwiegend aus Inseln zweier Monolagen gebildet werden. Die Ausdehnung der Inseln der dünneren Monolage ist vergleichbar mit der Exzitonenlokalisierungslänge, so dass eine nahezu vollständig thermalisierte Verteilung der PL-Emission beobachtet wird.

5.2 Statistische Eigenschaften - Autokorrelationsspektroskopie

Wichtig für das Verständnis der Eigenschaften dünner Quantenfilme ist die Kenntnis der statistischen Eigenschaften der untersuchten Probe. Dadurch können wichtige Parameter - wie die Korrelationslänge des Unordnungspotentials - gewonnen werden. Eine Festlegung der Erwartung der räumlichen Ausdehnung, Dipolmomente und Absorptionskoeffizienten unterschiedlicher Quantenpunkte ist dann möglich.

Eine der Methoden, Einblick in die statistischen Eigenschaften zu gewinnen, ist die Autokorrelationsspektroskopie [Run98a]. Savona und Zimmermann diskutierten theoretisch den Zusammenhang zwischen Autokorrelationsspektren und Korrelationslänge des Unordnungspotentials [Sav99]. Korrelationsfunktionen optischer Spektren wurden erstmals von Guest *et al.* und Freymann *et al.* bestimmt [Gue00, Fre01a]. Intonti *et al.* fanden in Autokorrelationsspektren charakteristische Minima der Autokorrelationsfunktion [Int00, Int01]. Durch Vergleich mit einer theoretischen Linienformanalyse konnte damit die mit der Niveauabstoßung räumlich überlappender Wellenfunktionen verbundene Energie-Antikorrelation in zufälligen statistischen Unordnungspotentialen nachgewiesen werden [Int01, Int02].

An CdSe/ZnSe Quantenfilmen wurden charakteristische Maxima detektiert und der Energiekorrelation zwischen Grund- und angeregten Exzitonzustand in einzelnen Monolageninseln zugeschrieben [Fre00, Fre01a].

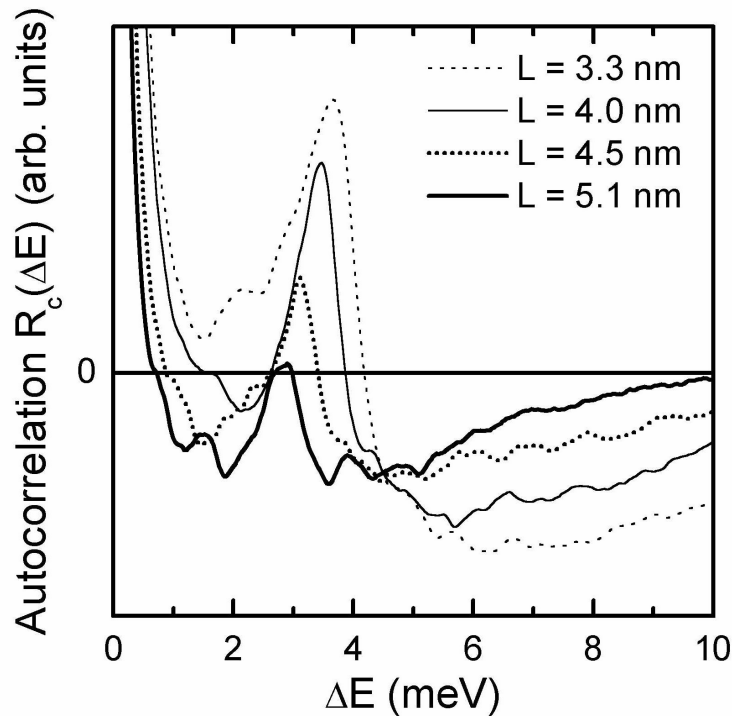


Abbildung 5.7: Autokorrelationsspektren der Quantenfilme **A-D**. An allen Filmen wird neben dem Selbstkorrelationsmaximum für $\Delta E = 0$ meV ein zweites klares Maximum bestimmt. Die Energieposition ΔE dieses Maximums beträgt je nach Quantenfilm zwischen 2.9 und 3.6 meV. Eine Blauverschiebung mit abnehmender Dicke des Quantenfilms wird festgestellt.

Die Methode, die bereits in Abs. 3.1.2 kurz skizziert wurde, ermöglicht über die Auflösung der Niveaubstöße eine Abschätzung der Korrelationslänge der untersuchten Probe. Dazu wurden für jeden Quantenfilm der Mehrfachquantenfilmprobe Landkarten von PL-Spektren mit 40×40 Punkten über einen Bereich von $10 \times 10 \mu\text{m}$ mit einer Anregeleistung zwischen 20 und 400 nW in *Anregungs-/Aufsammel*-Geometrie mit einer räumlichen Auflösung von ungefähr 200 nm aufgenommen. Dabei zeigt sich, dass die Resultate über einen weiten Bereich unabhängig von der Anregeintensität sind. Anschließend wurde über die spektrale Faltung der einzelnen Spektren und anschließende Mittelung über die individuellen Spektren die Autokorrelation $R_c(\Delta E)$ gebildet (vgl. Abs. 3.1.2, Gln. 3.27):

$$R_c(\Delta E) = R(\Delta E) - R_0(\Delta E), \quad (5.1)$$

mit

$$R(\Delta E) = A \left\langle \int dE' D_n(E') D_n(E' - \Delta E) \right\rangle, \quad (5.2)$$

und

$$R_0(\Delta E) = A \int dE' \langle D_n(E') \rangle \langle D_n(E' - \Delta E) \rangle. \quad (5.3)$$

Abb. 5.7 zeigt die so bestimmten Autokorrelationsfunktionen $R_c(\Delta E)$ der Quantenfilme **A** - **D** für eine Anregeleistung von 100 nW. Dabei wird ein großer Unterschied zu den bisher veröffentlichten Messungen deutlich. R_c zeigt für große Differenzenergien einen ähnlichen Verlauf wie Messungen an Quantenfilmen auf hochindizierten Substraten (vgl. [Int01, Fre01a]). Diese negativen Korrelationen bei Energien > 3 meV folgen der Korrelation des Unordnungspotentials $\langle V(\mathbf{R})V(\mathbf{R}') \rangle$ und sind im Wesentlichen ein Maß für die Amplitude des Unordnungspotentials [Int01, Sav02], welches für den Quantenfilm **A** 3.5 meV beträgt und auf 1.95 meV beim Quantenfilm **D** abnimmt.

Im niederenergetischen Bereich wird jedoch R_c durch ein stark ausgeprägtes schmalbandiges Maximum bei Energien zwischen 2.8 - 3.6 meV dominiert. Die Halbwertsbreite des Maximums beträgt 0.8 - 1.0 meV. Mit abnehmender Quantenfilmdicke wird eine deutliche Blauverschiebung des Maximums beobachtet (Abb. 5.7). Gleichzeitig nimmt die Amplitude dieses Maximums mit wachsender Filmdicke ab.

5.3 Diskussion

Die in Abb. 5.7 dargestellten Korrelationsfunktionen der Quantenfilme **A** - **D** können nicht durch ein statistisches Unordnungspotential mit nur einer Korrelationslänge beschrieben werden. Für ein solches Unordnungspotential weist die Korrelationsfunktion neben dem Selbstkorrelationsmaximum um $\Delta E = 0$ meV im Vergleich zur klassischen Korrelationsfunktion nur Intensitäts-Antikorrelationen auf [Int00, Int01]. Die in Abb. 5.7 dargestellten Messungen zeigen einerseits bei hohen Energien $\Delta E \gg 0$ die negative Korrelationsstruktur, die durch die Potentialkorrelation $\langle V(\mathbf{R})V(\mathbf{R}') \rangle$ bestimmt ist und somit Information über die inhomogene Verbreiterung trägt. Andererseits existiert neben dem Selbstkorrelationsmaximum bei $\Delta E = 0$ meV noch ein zweites klares Maximum auf $R_c(\Delta E)$. Ein solches Maximum der Korrelationsfunktion kann hervorgerufen werden, falls zusätzlich zu der Emission einer Exzitonenresonanz auch noch eine zweite Emission

detektiert wird, und die Energiedifferenz zwischen diesen Emissionen im Wesentlichen durch die Energieposition des Korrelationsmaximums gegeben ist. Dies ist ein klarer Fall von Lokalisierung, bei dem in einem Potentialminimum mehrere exzitonische Eigenfunktionen gebunden sind, diese Zustände nach nichtresonanter Anregung besetzt werden und deren Ladungsträgerbesetzungen zum Teil strahlend rekombinieren. Das Auftreten eines sehr klaren Maximums schmaler Breite deutet dabei darauf hin, dass die Quantenpunkte sehr ähnliche Formen und Größen besitzen und dass der energetische Abstand zwischen angeregtem Grundzustand und dem nächsthöheren an das Licht ankoppelnden Zustand um nicht mehr als 1 meV schwankt. Eine detaillierte theoretische Beschreibung der Autokorrelationsfunktion für solche ungeordneten Monolagen-Inseln liegt gegenwärtig noch nicht vor.

Unordnungspotential

Es liegt folglich nahe, ein Unordnungsmodell anzunehmen, das durch zwei Korrelationslängen bestimmt ist. Neben kurzreichweitigen Schwankungen des Potentials, das die inhomogene Linienbreite verursacht, führen langreichweitige Potentialfluktuationen zu Wachstumsinseln, in denen mehrere Exzitonenzustände lokalisiert sind. Die Energiedifferenz zwischen dem exzitonischen Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand gibt ein Maß für die mittlere Größe der Inseln. Sie kann unter der Annahme zylindersymmetrischer Quantenpunkte abgeschätzt werden.

Dabei erfolgt die Berechnung in der COM-Näherung³ unter Vernachlässigung der Wellenfunktionen in z -Richtung. Die Wellenfunktionen $\psi_\lambda(\mathbf{R})$ und die Eigenenergien E_λ können aus der Lösung der 2-D-Schrödingergleichung (3.14) bestimmt werden:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2M} \nabla_R^2 + V(\mathbf{R}) \right) \psi_\lambda(\mathbf{R}) = E_\lambda \psi_\lambda(\mathbf{R}). \quad (5.4)$$

Für einen zylindersymmetrischen Quantenpunkt beschreibt $V(\mathbf{R})$ das effektive Schwerpunktpotential, das aus der Faltung des Inselpotentials $V_I(\mathbf{R}) = \Theta(d - 2 \cdot |\mathbf{R} - \mathbf{R}_0|) \cdot V_{ML}$ mit der 1s-Exzitonewellenfunktion entsteht (vgl. Abs. 3.1.2). V_{ML} ist die Energiedifferenz zwischen den Monolagen N und $N + 1$ und \mathbf{R}_0 das Zentrum der Quantenpunktinsel.

Die Bestimmung der Ausdehnung der Quantenpunkte erfolgt über die Berechnung der Eigenfunktionen der 2-D-Schrödingergleichung. Dazu wird ein Bereich von 240 nm \times 240 nm inklusive Quantenpunkt in ein diskretes Gitter mit 48 \times 48 Punkten zerlegt. Anschliessend werden die Eigenwerte und Eigenfunktionen der 2-D-Schrödingergleichung für dieses Potentialgitter in Abhängigkeit des Quantenpunktdurchmessers d errechnet.

Abb. 5.8 zeigt die derart errechneten Energiedifferenzen zwischen Exzitonengrundzustand und dem ersten angeregten, optisch aktiven und im Quantenpunkt lokalisierten Zustand für die Quantenfilme **A** und **B**. Deutlich zeigt sich eine Zunahme der Energiedifferenz mit wachsendem Durchmesser des Quantenpunkts. Dies ist vorwiegend darauf zurückzuführen, dass die Berücksichtigung der 1-s-Exzitonewellenfunktion im effektiven Exzitonspotential $V(\mathbf{R})$ zu einer verstärkten Reduktion des Einschlusspotentials für abnehmende Quantenpunktdurchmesser führt. Für Quantenpunktausdehnungen von ungefähr 50 nm wird eine maximale Energiedifferenz berechnet. Für Ausdehnungen oberhalb 50 nm nimmt die Energiedifferenz wieder ab.

Der Durchmesser, der zu den in den Autokorrelationen (Abb. 5.7) gefundenen Energiedifferenzen von 3.7 meV für den Quantenfilm **A** bzw. 3.4 meV für den Quantenfilm **B** führt,

³COM: *center of mass motion*: Schwerpunktsbewegung

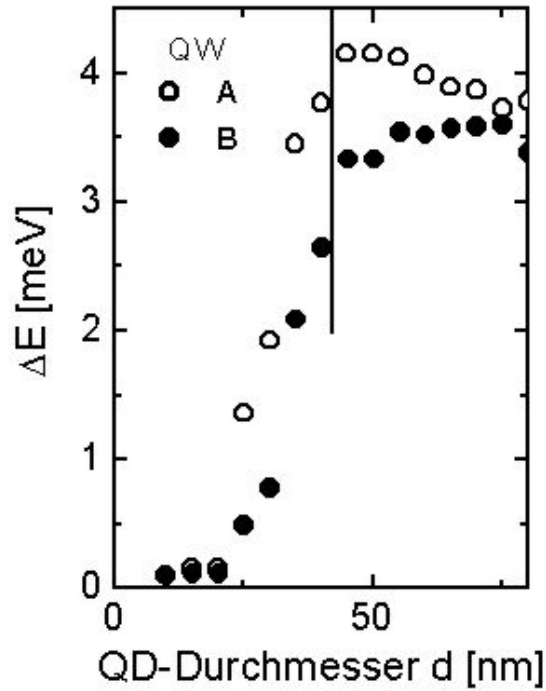


Abbildung 5.8: Energiedifferenz zwischen Exzitonengrundzustand und erstem angeregten, optisch aktiven Zustand in zylindrischen Quantenpunkten unterschiedlicher Durchmesser der Quantenfilme **A** und **B** und einem Einschlusspotential von 20.2 meV (**A**) bzw. 14.6 meV (**B**). Die in den Autokorrelationen beobachtete Differenzenergie wird für einen Durchmesser von ungefähr 45 nm errechnet.

kann durch eine derartige Berechnung zu ungefähr 45 nm bestimmt werden.

Für den 5.1 nm dicken Quantenfilm **D** beträgt das Monolagenpotential $V_{ML} \simeq 9.2$ meV. Die Energiedifferenz ΔE des Korrelationsspektrums bestimmt sich zu $\Delta E = 2.9 \pm 0.5$ meV. Diese Energiedifferenz zwischen Exzitonengrundzustand und erstem angeregten Zustand wird für einen Quantenpunktdurchmesser von $d = (45 \pm 5)$ nm erreicht. Analog ergeben sich für die anderen in Abb. 5.7 dargestellten Quantenfilme **A** - **C** vergleichbare Durchmesser von 40 - 50 nm.

Die abnehmende Quantenfilmdicke führt zu einer Zunahme des Einschlusspotentials V_{ML} ($V_{ML} \propto 1/L_z^2$ (vgl. Abs. 3.1)), folglich zu einer Zunahme der Energiedifferenz zwischen Exzitonengrundzustand und erstem angeregten Zustand. Dies erklärt die beobachtete Blauverschiebung des Korrelationsmaximums mit abnehmender Quantenfilmdicke.

Mit dieser Abschätzung der Ausdehnung der Quantenpunkte können auch Dipolmomente des Exzitonengrundzustands in diesen Monolageninseln ermittelt werden (vgl. Abs. 3.1.2, Gln. 3.20). So besitzt der Exzitonengrundzustand eines zylindersymmetrischen Quantenpunkts des Quantenfilms **D** bei dem Durchmesser von 45 nm ein Dipolmoment von 40-50 D.

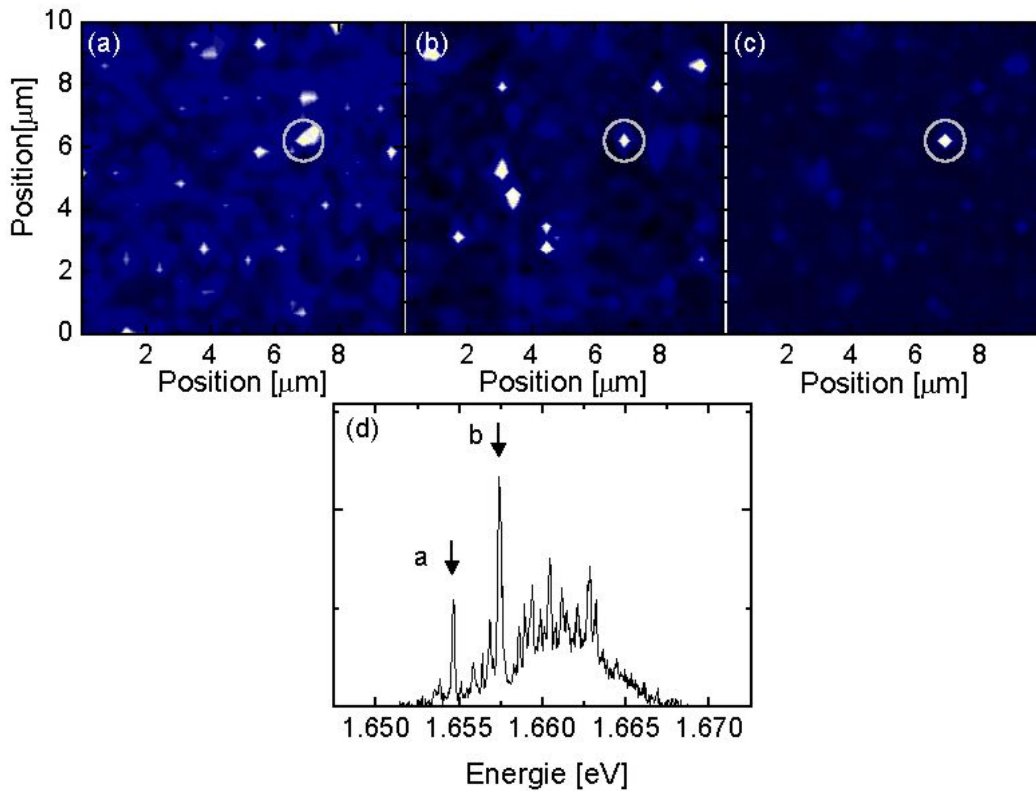


Abbildung 5.9: Die PL-Landkarte zeigt die Ortsabhängigkeit der Nahfeldemission des 5.1 nm dicken Quantenfilms für eine Detektionsenergie (a) $E_{det} = 1.654$ eV und der um $\Delta E = 2.8$ meV verschobenen Energie ((b), $E_{det} = 1.657$ eV). (c) Das Produkt der Landkarten (a) und (b) zeigt deutlich bei welchen Positionen in (a) und (b) Resonanzen auftreten (durch \circ gekennzeichnet). (d) PL-Emissionsspektrum an der mit \circ gekennzeichneten Position. Die korrelierten Zustände des Exzitonengrundzustands und des angeregten Zustands sind mit \downarrow gekennzeichnet. Deutlich ist, dass der angeregte Zustand eine höhere PL-Emissionsintensität aufweist als der Exzitonengrundzustand.

Angeregte Exzitonenzustände

Das Auftreten dieses zweiten korrelierten Zustands manifestiert sich auch in den räumlichen Profilen der PL-Spektren. So tritt gleichzeitig zu der Emission des Grundzustands der Energie E auch die Emission eines angeregten Zustands der Energie $E + \Delta E$ an dieser Position auf (Abb. 5.9 (a), (b) \circ , (d)). Dies wird besonders deutlich durch Multiplikation der PL-Emissionen beider Landkarten (a),(b) (Abb. 5.9(c)).

Bei Betrachtung des PL-Emissionsspektrums an dem durch \circ gekennzeichneten Ort ist auffallend, dass die Emission aus dem angeregten Zustand deutlich stärker ist als die Emission des Exzitonengrundzustands. Dieses Verhalten wird an zahlreichen unterschiedlichen Positionen beobachtet, so dass davon ausgegangen werden muß, dass im Allgemeinen der angeregte Zustand eine höhere PL-Emission aufweist als der Exzitonengrundzustand. Dieses Verhalten setzt voraus, dass Zahl der Ladungsträger, die strahlend rekombinieren, im angeregten Zustand höher ist als im Exzitonengrundzustand.

Für die Beobachtung eines angeregten Quantenpunktzustands in der PL-Emission existieren mehrere Voraussetzungen. Neben der für die Existenz eines lokalisierten angeregten Zustands

notwendigen Ausdehnung der Quantenpunkte, darf der strahlende Rekombinationskanal von Elektronen-Lochpaaren nicht unterdrückt sein. Stattdessen muss dieser die Besetzungsdynamik des angeregten Zustands entscheidend beeinflussen. Die strahlende Lebensdauer eines Zustands wird durch die Größe des Dipolmoments bestimmt. Dabei ist [Run02, Gue02]:

$$\tau_{rad} = \frac{3\pi\epsilon_0\hbar c^3}{n\omega_{QD}^3\mu_{QD}^2} \quad (5.5)$$

So ergibt das oben abgeschätzte Dipolmoment von 45 D eine strahlende Lebensdauer von 185 ps.

Neben strahlendem Zerfall wird die Lebensdauer von angeregten Zuständen zusätzlich durch Relaxationskanäle bestimmt. Ladungsträgerrelaxation erfolgt z. B. unter Emission von Phononen. Die Emission von LO-Phononen ist aufgrund der geringen Energiedifferenz von 2.5 - 3.5 meV unterdrückt. Der Hauptstreumechanismus ist LA-Phonon-Streuung über das Deformationspotential [Tak85]. Absorptionsraten für LA-Phononen können an der Linienbreite der einzelnen Grundzustands-Exzitonenresonanzen abgeschätzt werden [Gam95a]. Sie betragen für lokalisierte Exzitonenzustände in „interface Quantenpunkten“ bei 12 K typischerweise 0.02 ps⁻¹ [Gam95a, Esh00].

Aufgrund der hohen PL-Emission auch bei niedrigen Anregungsintensitäten muss die strahlende Rekombinationsrate zumindest vergleichbar mit der Relaxationsrate sein. Dies setzt nach Gln. 5.5 ein Dipolmoment von mindestens 70 D voraus.

Diese beobachteten hohen Emissionsintensitäten aus dem angeregten Zustand können nur verstanden werden, wenn keine thermalisierte Exzitonenverteilung vorliegt, d. h. die Emission ist nicht durch den Exzitonengrundzustand dominiert. Die Intensität der PL-Emission kann nicht mehr durch eine thermische Verteilungsfunktion $\propto \exp(-\Delta E/k_B T)$ angegeben werden, sondern die PL-Emission des angeregten Zustands ist im Gegensatz dazu gegenüber der Grundzustandsemission deutlich überhöht.

Eine Möglichkeit, diese ungewöhnlichen Beobachtung zu erklären, besteht darin, anzunehmen, dass die strahlende Rekombinationsrate größer ist als die Relaxationsrate eines angeregten Zustands in den Exzitonengrundzustand. Über Autokorrelationsspektren an dünnen GaAs(100)-Quantenfilmen wurde bereits von Freymann *et al* berichtet [Fre01b]. Die Korrelationsfunktion zeigt im Wesentlichen schwaches Maximum bei 3 meV, ist aber bei weitem nicht so klar sichtbar wie in dem vorliegenden Fall (Abb. 5.7). Unter Anwendung von Filterfunktionen der Form $\propto \exp((E - E_0)/\Delta E)$ auf die PL-Emissionsspektren kann dabei ausschließlich der niederenergetische oder hochenergetische Bereich der PL-Emission berücksichtigt werden.

Unterzieht man die experimentell gewonnenen PL-Emissionsspektren des 5.1 nm dicken Quantenfilms **D** der in [Fre01a, Fre01b] genauer beschriebenen Methode mit unterschiedlichen ΔE für den niederenergetischen Bereich ($0 \text{ meV} > \Delta E > -3 \text{ meV}$), ist eine genauere Analyse des Verhältnisses der Emissionsintensitäten aus Grund- und angeregten Zuständen möglich. So erfährt gerade durch den Einsatz negativer ΔE das ausgeprägte positive Maximum bei einer Energie von 2.8 meV eine zusätzliche Erhöhung (Abb. 5.10). Eine Energieverschiebung findet nicht statt. Eine maximale Überhöhung der Amplitude wird bei der Verwendung der Filterenergie $\Delta E = -2.5 \text{ meV}$ erreicht (Abb. 5.10 (b) ...). Die maximale Fläche unter diesem Korrelationsmaximum hingegen wird aufgrund der spektralen Breite und der starken Überhöhung durch die Filterfunktion bei $\Delta E \simeq -2.9 \text{ meV}$ bestimmt. Dies entspricht den Erwartungen für eine nicht-thermalisierte PL-Emission, bei der die Emission des

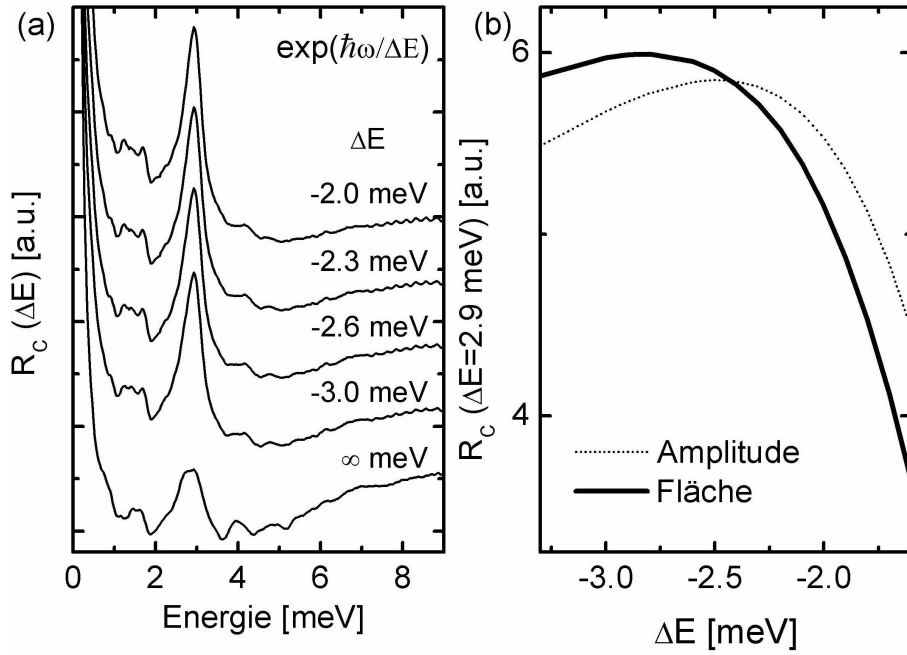


Abbildung 5.10: (a) Autokorrelationen des 5.1 nm dicken Quantenfilms **D** nach Gewichtung mit einer Filterfunktion der Form $\exp(\hbar\omega/\Delta E_0)$. Deutlich sichtbar ist die Überhöhung des angeregten Zustands bei gleichzeitiger Anhebung des niederenergetischen Spektrums. Die PL-Emission ist nicht thermalisiert, stattdessen ist die Intensität des angeregten Zustands gegenüber dem Exzitonengrundzustand erhöht. (b) Die Amplitude und die Fläche des zweiten Korrelationsmaximums in Abhängigkeit der Filterenergie ΔE zeigen ein deutliches Maximum für $\Delta E = 2.5$ meV (Amplitude) bzw. 2.9 meV (Fläche).

angeregten Exzitonenzustands gegenüber der des Exzitonengrundzustands deutlich erhöht ist (vgl. Abb. 5.9(d)). Dabei gibt die Filterenergie maximaler Überhöhung ein ungefähres Maß für das Verhältnis der Emissionen zwischen Exzitonengrundzustand und angeregtem Zustand an⁴. Für die bestimmte Filterenergie von ungefähr (-2.5 ± 0.2) meV entspricht dies einem Verhältnis: $F = I_0/I_1 \approx (0.32 \pm 0.04)$. Daraus würde man abschätzen, dass aus dem angeregten Zustand im Durchschnitt etwa 3-Mal so viele Ladungsträger strahlend wie aus dem Exzitonengrundzustand relaxieren. Dies steht in guter Übereinstimmung zu den beobachteten Emissionsintensitäten. So wird für diese korrelierten Zustände ein Verhältnis von $I_0/I_1 = 0.3$ bis 0.4 bestimmt (vgl. Abb. 5.9(d)). Folglich muss die Ladungsträgerrelaxation aus den angeregten Zuständen deutlich unterdrückt sein, so dass Ladungsträger des angeregten Exzitonenzustands vorwiegend strahlend rekombinieren. Dies legt eine im Vergleich zum Exzitonengrundzustand um einen Faktor drei verkürzte strahlende Lebensdauer nahe. Bei einer Grundzustandslebensdauer von ungefähr 185 ps (für 45 D) lässt sich eine strahlende Lebensdauer von $\tau_{rad} < 60$ ps und folglich ein Dipolmoment von mehr als 80 D bestimmen.

Die Autokorrelationsfunktion der untersuchten (100)-Quantenfilme wird also im Wesentlichen durch ein ausgeprägtes Maximum bei einer Energie von ca. 3 meV bestimmt. Das Maximum weist die Energiekorrelation zwischen Exzitonengrundzustand und optisch

⁴Die Korrelationsfunktion wird maximal, wenn beide Maxima die gleiche Intensität besitzen

aktivem angeregten Zustand in einzelnen Monolageninseln nach. Dieses angeregte Korrelationsmaximum überdeckt womöglich die aus der Energieabstoßung hervorgerufenen negativen Korrelationsstrukturen bei geringen Energien, die die Autokorrelationsfunktion auf rauen (311)A-GaAs-Quantenfilmen dominieren. Eine weitergehende Analyse dieser Daten setzt ein detailliertes Verständnis der klassischen Potentialkorrelation und der Verteilung an Inselgrößen voraus. Hierzu liegen allerdings bislang noch keine theoretischen Untersuchungen vor.

5.4 Zusammenfassung

Die nahfeldoptische Untersuchung der Mehrfachquantenfilmprobe mit PL- und Autokorrelationsspektroskopie ergibt einen Einblick in die linearen optischen sowie statistischen Eigenschaften der unterschiedlichen Quantenfilme. Sie bietet so die Möglichkeit der Untersuchung des Unordnungspotentials der Quantenfilme. Weiterhin ist eine Abschätzung der mittleren Ausdehnung der Schwerpunktswellenfunktionen möglich.

Eine erste Charakterisierung der Probe bietet die Untersuchung der inhomogenen Linienverbreiterung in Abhängigkeit der Quantenfilmdicke. Sie erlaubt die Bestimmung der Amplitude kurzreichweitiger Potentialfluktuationen. So konnte für die unterschiedlichen Quantenfilme eine Fluktuationsamplitude von ungefähr 0.3 ML bestimmt werden.

Neben dem Exzitonengrundzustand wird auch eine starke Emission aus dem ersten angeregten Zustand beobachtet. Dieser erste angeregte optisch aktive Zustand manifestiert sich sowohl in Nahfeld PL-Spektren als auch in einem sehr ausgeprägten Maximum der Korrelationsfunktion R_c . Die geringe Variation der Energiedifferenz dieses Maximums legt nahe, dass die Inseln der dickeren Monolage sehr ähnlich in Form und Ausdehnung sind. Die Ausdehnung wurde unter der Annahme von zylindersymmetrischen Quantenpunkten abgeschätzt. Sie beträgt für die unterschiedlichen Quantenfilme ungefähr 40 - 50 nm.

Durch die Ermittlung der Inselausdehnung und die Beobachtung einer erhöhten Emission aus dem angeregten Zustand ist es auch möglich, erste Erwartungen für das Dipolmoment dieser Quantenpunkte zu geben. So ist das ermittelte Dipolmoment von 40 D für den Exzitonengrundzustand, sowie von 70 D für den angeregten Zustand im Rahmen der experimentell beobachteten Dipolmomente [Sti01, Gue02, Sti02a] und den theoretischen Erwartungen [And99].

Für ein weitergehendes Verständnis des Unordnungspotentials ist insbesondere eine theoretische Analyse des Autokorrelationsspektrums für Proben mit Monolagen-Wachstumsinseln erforderlich.

Kapitel 6

Femtosekunden-Spektroskopie an einzelnen Halbleiterquantenpunkten

Die fs-Nahfeld-Anrege-Abtastspektroskopie bietet die Möglichkeit, die Dynamik einzelner Quantenpunkte isoliert mit einer Zeitauflösung von weniger als 100 fs zu untersuchen. Dabei kann die Wechselwirkung mit den umgebenden elektronischen Zuständen gezielt ausgenutzt werden, um neben der reinen Besetzungsdynamik auch direkt Einblick in die Polarisationsdynamik einer isolierten Quantenpunktresonanz zu gewinnen.

In diesem Kapitel wird neben der Darstellung der experimentellen Ergebnisse die Signalentstehung, sowie die physikalische Ursache der beobachteten Signaturen untersucht. So wird der Einfluss der Ladungsträgerrelaxation, des Ladungsträgertransports sowie der Ladungsträgerrekombination diskutiert und anhand des detektierten Signals überprüft. Zusätzlich dazu wurden die Signale zu positiven und negativen Verzögerungszeiten einer genauen Betrachtung unterzogen und im Detail diskutiert.

Besondere Bedeutung kommt hierbei der Wechselwirkung der kohärenten Polarisation eines Quantenpunktes mit elektronischen Zuständen der Umgebung zu. Diese führt zu einer anregungsinduzierten Dephasierung der vom Abtastimpuls getriebenen Polarisation. Eine nahezu vollständige Rekonstruktion der Polarisationsdynamik ist möglich.

6.1 Femtosekunden-Nahfeld-Anrege-Abtast-Spektroskopie - Übertragung der Ergebnisse linear optischer Spektroskopie

Die experimentell mit Hilfe der PL- und Autokorrelationsspektroskopie gewonnenen Ergebnisse ergaben einen Einblick in die Eigenschaften der Mehrfachquantenfilmprobe. Insbesondere konnte eine erste Abschätzung der Ausdehnungen der lokalisierten Exzitonenwellenfunktionen und der daraus resultierenden Dipolmomente gegeben werden.

Durch die Beobachtung des ersten angeregten Zustands und der Energiedifferenz zwischen Exzitonengrundzustand und angeregtem Zustand konnten Ausdehnungen von 40–50 nm und Dipolmomente von 40–50 D abgeschätzt werden. Diese stehen dabei in guter Übereinstimmung zu theoretischen Erwartungen [And99] und zu experimentellen Ergebnissen an ähnlichen Quantenpunkten [Sti01, Gue02, Sti02a]. Sie geben einen ersten Aufschluss über maxi-

male Rekombinationszeiten, maximale Dephasierungszeiten, minimale Linienbreiten, sowie die maximale Absorption eines einzelnen Quantenpunkts, die auch die maximale Reflektivitätsänderung bestimmt.

Die Rekombinationszeit ist durch strahlenden Zerfall limitiert. Die Zeitkonstante für den strahlenden Zerfall bestimmt sich direkt aus dem Dipolmoment (Gln. 5.5). Für ein Dipolmoment von 45 D wird eine strahlende Rekombinationszeit von $T_1 \approx 160$ ps erwartet.

Für die maximale Dephasierungszeit gilt $T_2 \leq 2 \cdot T_1$ (vgl. Gln. 3.68). Eine maximal erreichbare Dephasierungszeit $T_2 \leq 320$ ps wird erwartet. Dies entspricht einer homogenen Linienbreite von $\sigma_0 \approx 4 \mu\text{eV}$.

Tatsächlich wurden anhand der Linienbreite der Absorption bzw. Emission an ähnlichen Quantenpunkten bislang erst Dephasierungszeiten von ungefähr 50 ps ermittelt [Bon00]. Die Linienverbreiterung wurde vor allem der zusätzlichen Dephasierung infolge von Phononstreuung bei Temperaturen $T > 0$ zugeschrieben. Die Linienbreite ist dabei bestimmt durch [Sch86]:

$$\Gamma_{hom}(T) = \Gamma_{hom}(0) + \gamma_{AC}T + \gamma_{LO} \left(\frac{1}{e^{\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right)} - 1} \right) \quad (6.1)$$

Als Folge dieser Verminderung der Dephasierungszeit wird eine minimal erreichbare Linienbreite von $2\hbar\gamma \approx 15 \mu\text{eV}$ beobachtet.

Dank der Kenntnis der räumlich-optischen Auflösung und der Dipolmomente einzelner Quantenpunkte können mögliche Reflektivitätsänderungen der Quantenpunkte abgeschätzt werden. Dabei wird der Quantenpunkt als ein Zweiniveausystem im Bereich linearer Absorption betrachtet. Dann kann der Absorptionsquerschnitt $\sigma(\omega)$ über

$$\sigma(\omega) = \frac{\omega \mu_{QD}^2}{nc\epsilon_0 \hbar} \frac{\gamma}{\gamma^2 + (\omega - \omega_0)^2} \quad (6.2)$$

bestimmt werden [Gue02]. Eine Abschätzung der Reflexionsintensität und somit auch der maximalen Reflektivitätsänderung kann unter Kenntnis der räumlichen Auflösung über

$$I_R = I_0 \sigma(\omega) / A \quad (6.3)$$

unter Berücksichtigung des Reflexionskoeffizienten der Probenoberfläche gewonnen werden. Legt man die ermittelte räumlich-optische Auflösung von 220 nm zugrunde und berücksichtigt die endlichen Monochromatorauflösung von 60 μeV , kann eine maximale Reflektivitätsänderung von ungefähr 5% für ein Dipolmoment von 45 D abgeschätzt werden.

Um Experimente innerhalb des Bereichs linearer Absorption durchführen zu können, ist es notwendig, die Impulsfläche Θ für einzelne Quantenpunkte zu bestimmen (vgl. Abs. 3.5.1, Gln. 3.69). Die Anforderung an das Experiment ist, dass die eingesetzte Leistung des Abtastimpuls zu Impulsflächen deutlich unterhalb von π führt. Bei dem in den Experimenten eingesetzten Ti:Sa-Lasersystem mit einer Repetitionsrate von 80 MHz und Impulsdauern von 300 fs wird nach Gln. 3.69 eine Impulsfläche $\Theta \simeq \pi$ für ein Dipolmoment von 45 D erst bei Abtastimpulsintensitäten oberhalb von 400 nW erwartet. Allerdings reduziert sich diese bei den maximal zu erwartenden Dipolmomenten von bis zu 100 D bereits auf ungefähr 90 nW. Daher ergeben sich folgende Anforderungen an das Experiment:

- Die Abtastimpulsleistung muss deutlich unterhalb von 90 nW liegen, um an möglichst vielen Quantenpunktresonanzen mit kleinen Impulsflächen ($\Theta \ll \pi/2$) arbeiten zu können.

- Aufgrund des limitierten Detektionskoeffizienten der Intensität von $3 \cdot 10^{-3}$ wird eine Leistung von mindestens 60 nW benötigt, um Messungen an einer ausreichenden Zahl von Verzögerungszeiten durchführen zu können (vgl. Abs. 4.4.1). Dabei entsprechen 60 nW einer Anregeleistung von nur 2800 Photonen pro Lichtimpuls, von denen 5 auf der CCD Kamera detektiert werden (vgl. Abs. 4.4.1). Aufgrund dieser hohen Effizienz ist es mit dieser eingesetzten Leistung von 60 nW möglich, die Messzeit pro Zeitschritt auf unter eine Minute zu begrenzen, um Signale von 0.1% mit einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis von 10:1 zu detektieren. Bei einer Positions-Drift limitierten Messzeit von ungefähr vier Stunden können somit Spektren der Reflektivitätsänderungen von über 150 Verzögerungszeiten untersucht werden.

Gleichzeitig führen die oben dargestellten Resultate zu zahlreichen Erwartungen an das Experiment.

- Die maximal detektierbare Reflektivitätsänderung sollte mehrere Prozent betragen.
- Die Populationsdynamik in einzelnen Quantenpunkte sollte je nach Dipolmoment bis zu Verzögerungszeiten von $\Delta t = 100\text{--}200$ ps detektierbar sein.
- Die endliche Monochromatorauflösung von $60 \mu\text{eV}$ beschränkt die Linienbreite und somit die detektierbare Polarisationsdephasierungszeit auf 15 ps. Es können aufgrund dieser Limitierung Reflektivitätsänderungen für negative Verzögerungszeiten in einem Zeitfenster von maximal $-30 \text{ ps} \leq \Delta t$ beobachtet werden.

6.2 Experimentelle Ergebnisse

6.2.1 Nichtlineares optisches Spektrum des Quantenfilms D

Zur Untersuchung des nichtlinearen optischen Signals eines einzelnen Quantenpunkts wird die Probe auf nominell 12 K abgekühlt. Die eingesetzten Lichtimpulse besitzen eine Dauer von 200 fs. Der Anregeimpuls wird nichtresonant zur Quantenfilmresonanzenergie gewählt. Er besitzt eine Zentralenergie von 1.687 eV und erzeugt vorwiegend Ladungsträger mit einer Überschussenergie von 27 meV (vgl. Abb. 6.1). Die Bandbreite des Anregeimpulses beträgt 7 meV (vgl. Abb. 6.1 (b)). Die in die Glasfaser eingekoppelte Leistung des Anregeimpulses beträgt 100 nW. Die Anregefläche ist $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ unter der Annahme einer räumlichen Auflösung von 220 nm. Das führt dazu, dass bei einem Absorptionskoeffizienten von $\alpha_0 = 2 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1}$ und bei 80×10^6 Impulsen/s pro Anregeimpuls etwa 5 Elektronen-Lochpaare in Kontinuumszuständen des Quantenfilms erzeugt werden. Die Zentralenergie des breitbandigen Abtastimpulses von 1.65 eV ist zwischen den Resonanzenergien der Quantenfilme **D** und **E**, die in einer Tiefe von 123 nm (**D**) bzw. 152 nm (**E**) unter der Oberfläche vergraben sind. Die Bandbreite des Impulses beträgt 30 meV. Es können somit der Quantenfilm **D** und **E** simultan detektiert werden. Die in die Glasfaser eingekoppelte Leistung des Abtastimpulses beträgt 60 nW. Vor der Detektion wird das von der Probe reflektierte und von der Nahfeldsonde aufgesammelte Licht mit einem $f = 0.5$ m-Monochromator mit einer Auflösung von $60 \mu\text{eV}$ in seine Spektralkomponenten aufgespalten. Die anregeimpulsinduzierte PL-Emission wird simultan zu der Reflektivitätsänderung unter Abwesenheit des Abtastimpulses detektiert.

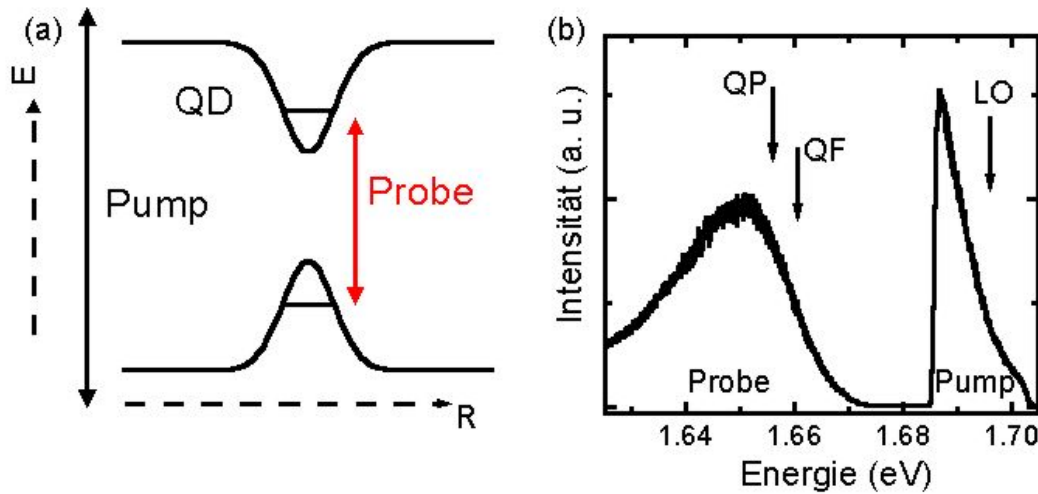


Abbildung 6.1: (a) Schematische Darstellung der Energien des Anrege und Abtastimpuls im Verhältnis zu der Quantenpunkt- und Quantenfilmresonanz: Der Anregeimpuls erzeugt Ladungsträger im Quantenfilmkontinuum. Der Abtastimpuls wird in Resonanz zur Quantenpunktresonanz gewählt. (b) Energiespektrum des Anrege- und Abtastimpuls. Der Abtastimpuls ist zentriert bei einer Energie von 1.65 eV mit einer Halbwertsbreite von 30 meV. Der Anregeimpuls besitzt das Intensitätsmaximum bei einer Energie von 1.687 eV und eine Halbwertsbreite von 6 meV. ↓: Energiepositionen der PL-Emission des im Folgenden dargestellten Quantenpunkts (QP), des PL-Emissionsmaximums des 5.1 nm dicken Quantenfilms (QF) und der um die LO-Phononenenergie verschobenen Energieposition des Quantenfilms ($E_{LO} = E_{QW} + 36$ meV, LO). Die Intensität des Anregeimpulses ist an der LO-Phonon Resonanz bereits auf ein Drittel der Maximalintensität abgefallen.

Spektrum der Reflektivitätsänderung des 5.1 nm dicken Quantenfilms D

Das typische Nahfeld-PL-Spektrum des 5.1 nm dicken Quantenfilms zeigt neben einem breitbandigen inhomogen verbreiterten Emissionskontinuum mit einer Linienbreite von 5 meV einzelne wenige scharfe PL-Emissionsresonanzen (Abb. 6.2 (...)). Diese PL-Resonanzen können lokalisierten Exzitonen zugeschrieben werden [Gam96a].

Betrachtet man das Spektrum der Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Verzögerungszeiten zwischen -60 ps und 50 ps ($\Delta R(\omega)/R_0$), treten wenige, spektral schmalbandige Reflektivitätsänderungen an unterschiedlichen Energiepositionen zutage. In Abb. 6.2 sind vier typische $\Delta R/R_0$ -Spektren für Verzögerungszeiten von $\Delta t = -60, -5, 5, 50$ ps dargestellt. Entspricht die Verzögerungszeit der Referenzverzögerungszeit ($\Delta t = -60$ ps), wird keine Reflektivitätsänderung detektiert. Das Spektrum zeigt ausschließlich die für die Experimente typische Rauschamplitude von 3×10^{-4} . Im Gegensatz dazu werden auf den anderen in Abb. 6.2 dargestellten Spektren 9 scharfe isolierte Resonanzen beobachtet. Es werden folglich sowohl für positive Verzögerungszeiten als auch für kurze negative Verzögerungszeiten nicht verschwindende Signale detektiert. Die Reflektivitätsänderungen $\Delta R/R_0$ dieser Resonanzen weisen zumeist ein negatives Vorzeichen auf. Es existieren allerdings auch Resonanzen mit einer positiven Reflektivitätsänderung. Die maximal detektierte Reflektivitätsänderung beträgt $\Delta R_{max}/R_0 \approx 0.01$. Tendenziell nimmt die Reflektivitätsänderung unterhalb der Energie maximaler Photolumineszenzemission des Quantenfilms mit wachsender Resonanzenergie zu. Oberhalb dieser Energie nimmt $\Delta R/R_0$ mit wachsender Resonanzenergie wieder

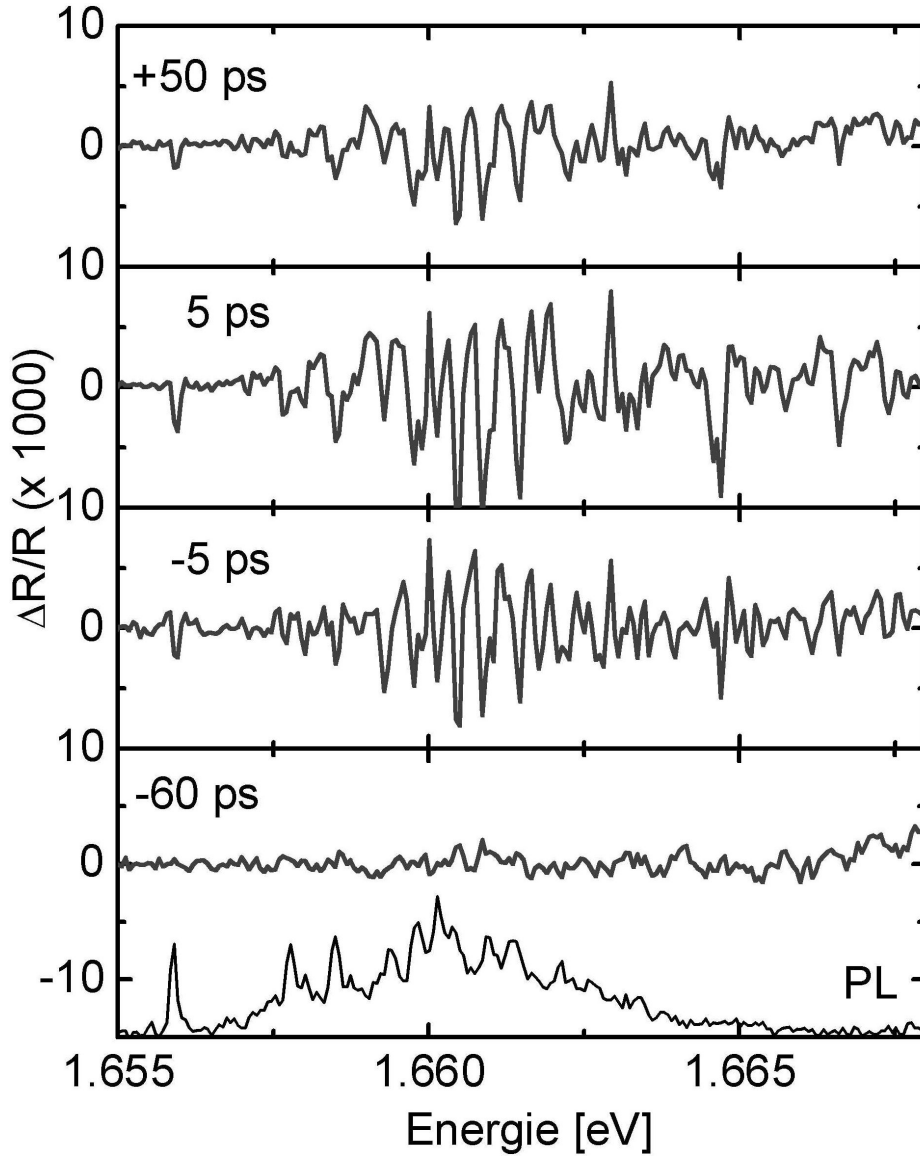


Abbildung 6.2: Typische Spektren der PL-Emission (\cdots) und der anregeimpulsinduzierten Reflektivitätsänderung $\Delta R(\omega)/R$ ($-$) des 5.1 nm dicken Quantenfilms **D** für vier verschiedene Verzögerungszeiten Δt . Während für $\Delta t = -60$ ps keine Reflektivitätsänderung detektiert wird, treten für kurze negative Verzögerungszeiten, sowie für positive Verzögerungszeiten im $\Delta R/R$ -Spektrum 9 isolierte scharfe Resonanzen zutage, die jeweils einem einzelnen Quantenpunkt zuzuordnen sind. Unterhalb der Bandkante von 1.66 eV sind auf dem PL-Spektrum ebenfalls scharfe Resonanzen zu erkennen.

ab (vgl. Abb. 6.2 ...).

Im niederenergetischen Spektrum werden einzelne isolierte Resonanzen beobachtet. Die scharfen Reflektivitätsänderungen sind direkt mit scharfen PL-Emissionslinien eines lokalisierten Zustands verknüpft. In Nähe der maximalen PL-Emissionsintensität weist das Spektrum eine komplexe Form mit zahlreichen Minima und Maxima auf. Oberhalb der maximalen PL-Intensität treten weitere $\Delta R/R_0$ -Resonanzlinien auf, denen keine PL-Emissions-Resonanz zugewiesen werden kann.

Diese Form des Reflektivitätssignals wird auch an (311)A-GaAs-Quantenfilmen gefunden.

Spektrum der Reflektivitätsänderung einzelner Quantenpunkte

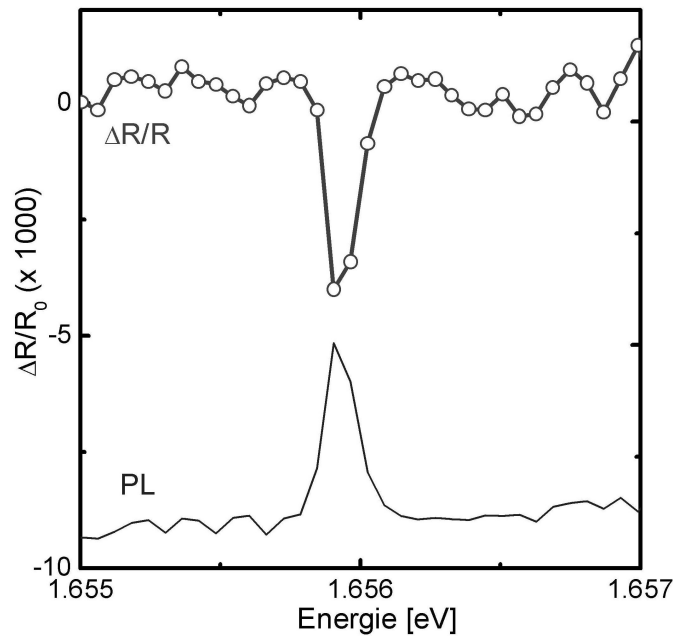


Abbildung 6.3: Vergleich von $\Delta R/R$ mit dem Photolumineszenzspektrum eines einzelnen Quantenpunkts bei einer Verzögerungszeit $\Delta t = 5$ ps. Die Photolumineszenzemission weist eine lorentzförmige Emissionslinie eines einzelnen Quantenpunkts auf. Die Linienbreite beträgt monochromatorbegrenzt $100 \mu\text{eV}$. Das nichtlineare $\Delta R/R_0$ -Spektrum zeigt eine scharfe, nahezu lorentzförmige Resonanz eines einzelnen Quantenpunkts. Die Energie der Reflektivitätsänderung ist isoenergetisch zu der simultan detektierten Photolumineszenz. Die Linienbreite von $\Delta R/R_0$ beträgt wie die der Photolumineszenzemission $100 \mu\text{eV}$.

Am äußersten niederenergetischen Rand des Photolumineszenzspektrums von Abb. 6.2 wird eine scharfe, isolierte Resonanz detektiert. Sie ist in Abb. 6.3 für eine Verzögerungszeit von $\Delta t = 5$ ps genauer dargestellt. Das PL-Spektrum zeigt bei der Detektionsenergie $E_{\text{det}} = 1.6559$ eV eine näherungsweise lorentzförmige Emissionslinie mit einer Linienbreite von $100 \mu\text{eV}$. Außerhalb der Resonanz wird nahezu keine PL-Emission beobachtet.

Das simultan detektierte $\Delta R/R_0$ -Signal weist eine negative Reflektivitätsänderung auf, die diesem lokalisierten Exzitonenzustand zugeordnet werden kann (○). Die Linienform der Reflektivitätsänderung ist ebenfalls lorentzförmig. Die Linienbreite beträgt wie für die PL-Emission $100 \mu\text{eV}$. Die maximale Reflexionsänderung ist $\Delta R(\omega_0)/R_0 \simeq 4.2 \times 10^{-3}$. Bemerkenswert ist, dass die Resonanz der Reflektivitätsänderung im Rahmen der Mono-

chromatograuflösung isoenergetisch zu der simultan detektierten PL-Emission ist.

Außerhalb der Linienbreite der Resonanz in einem spektralen Bereich von ± 2 meV wird kein weiteres Reflektivitätsänderungssignal beobachtet.

Die anderen in Abb. 6.3 dargestellten Resonanzen weisen eine ähnliche Reflektivitätsänderung auf. Die Linienform ist für $\Delta t > 0$ lorentzförmig und die Resonanz ist isoenergetisch zu der detektierten PL-Emission.

Anregeintensitätsabhängigkeit

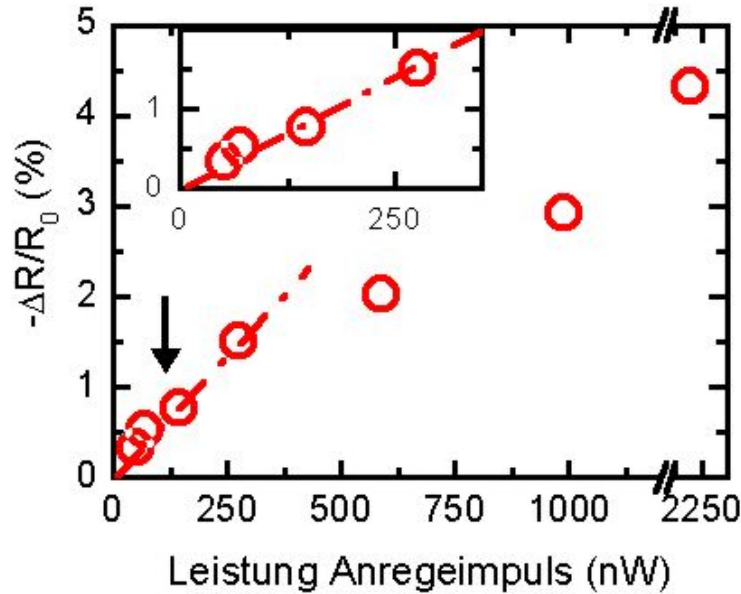


Abbildung 6.4: Anregeimpulsinduzierte Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ in Abhängigkeit der Anregeimpulsintensität des in Abb. 6.3 dargestellten Quantenpunkts für eine Verzögerungszeit von $\Delta t = 3$ ps. $\Delta R/R$ zeigt für Intensitäten $0 < P_{pu} < 300$ nW eine nahezu lineare Abhängigkeit der Maximalamplitude $\Delta R/R_0 \propto P_{pu}$. Für höhere Intensitäten wird ein Abweichen von der linearen Abhängigkeit detektiert. Für eine Anregeleistung von $2.25 \mu\text{W}$ werden Reflektivitätsänderungen $\Delta R/R_0 \lesssim 4.2\%$ bestimmt.

Für positive Verzögerungszeiten führt die Variation der Anregeintensität zu Änderungen der Amplitude der Reflexionsänderung und der PL-Emission. Abb. 6.4 zeigt die Resonanzamplitude $\Delta R(\omega_0)/R_0$ des in Abb. 6.3 dargestellten Quantenpunkts in Abhängigkeit der eingekoppelten Anregeimpuls-Leistung bei $\Delta t = 5$ ps. Im Bereich niedriger Intensitäten bis 250 nW ist die Reflektivitätsänderung proportional zur Intensität des Anregeimpulses: $\Delta R(\omega_0)/R_0 \propto P_{pu} \propto |E_{pu}|^2$ (inset). So wird für eine Anregeintensität von 250 nW eine Reflektivitätsänderung von 1.5% detektiert.

Oberhalb der Leistung von 250 nW wird ein zunehmendes Abweichen von der Linearität beobachtet. Der Anstieg der Reflektivitätsänderung nimmt mit zunehmender Anregeimpulsleistung ab. Die maximal beobachtete Reflektivitätsänderung $\Delta R_{sat}/R_0$ wurde bei einer Anregeimpulsleistung von $2.25 \mu\text{W}$ gefunden. Sie beträgt $\Delta R_{sat}/R_0 = 4.2\%$. Für andere Quantenpunkte des Quantenfilms **D** können Reflektivitätsänderungen bis zu 7 % bestimmt werden.

6.2.2 Zeitaufgelöste Reflektivitätsänderung eines einzelnen Quantenpunktes

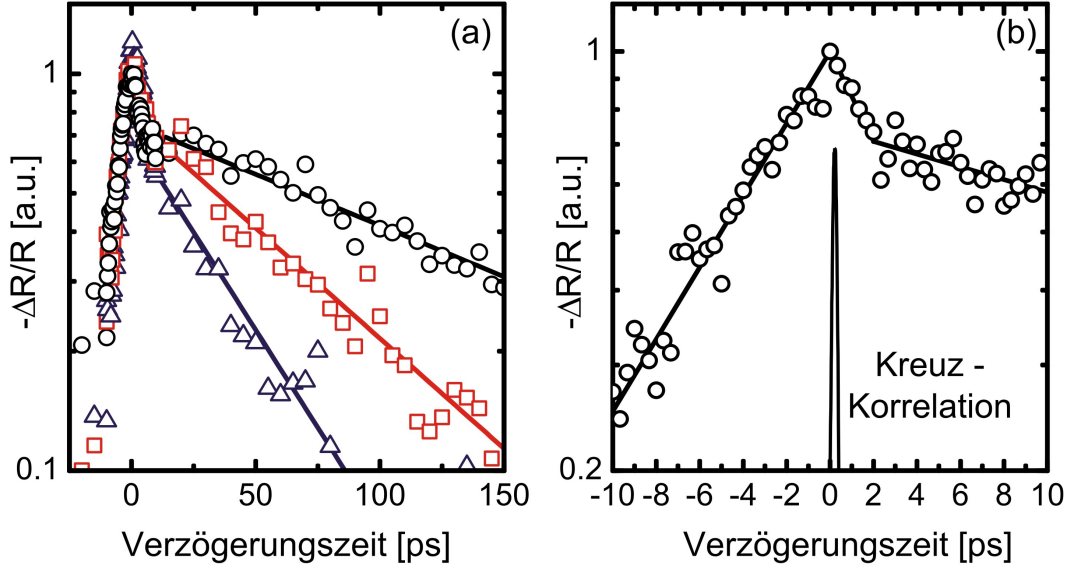


Abbildung 6.5: (a) Zeitentwicklung von $\Delta R/R$ dreier unterschiedlicher Quantenpunktresonanzen auf einer Zeitskala zwischen -20 ps und 150 ps. Die Detektionsenergie beträgt $E_o = 1.6559$ eV, $E_{\square} = 1.6647$ eV und $E_{\triangle} = 1.6672$ eV. Alle Resonanzen zeigen einen biexponentiellen Abfall: einen schnellen Abfall mit einer für alle Resonanzen nahezu identischen Abfallszeit, sowie einen individuellen langsamen Zerfall. (b) Zeitentwicklung der Reflektivitätsänderung bei einer Detektionsenergie von $E_{QD} = 1.6559$ eV auf einer Zeitskala zwischen -10 ps und 10 ps. Für $\Delta t > 0$ wird der in (a) beschriebene biexponentielle Abfall deutlich. Für $\Delta t < 0$ wird zusätzlich eine nicht verschwindende Reflektivitätsänderung beobachtet. Dabei ist $\Delta R(\Delta t, \omega_0)/R_0 \neq 0$ für Verzögerungszeiten $-10 \text{ ps} < \Delta t < 0$. Alle beobachteten Abfallzeiten besitzen Zeitkonstanten, die deutlich länger als die Zeitauflösung des Experiments sind. (—): Kreuzkorrelation zwischen Anrege- und Abtastimpuls.

Zur Bestimmung der Dynamik der spektral aufgelösten Reflektivitätsänderung werden Spektren unterschiedlicher Verzögerungszeiten Δt auf einer Zeitskala zwischen -20 ps und 150 ps detektiert. Anschließend wird die Zeitentwicklung auf der Detektionsenergie maximaler Reflektivitätsänderung für unterschiedliche Quantenpunktresonanzen untersucht. In Abb. 6.5 ist die Zeitentwicklung der Reflektivitätsänderung für drei unterschiedlicher Resonanzenergien von Quantenpunkten dargestellt. Die Resonanzenergien sind: $E_o = 1.6559$ eV, $E_{\square} = 1.6647$ eV bzw. $E_{\triangle} = 1.6672$ eV. Alle drei Transienten zeigen für negative Verzögerungszeiten einen näherungsweise identischen exponentiellen Abfall. Für positive Verzögerungszeiten wird ein biexponentieller Abfall beobachtet. Während die Zeitskala für den schnellen exponentiellen Abfall zu positiven Verzögerungszeiten für alle Quantenpunktresonanzen ungefähr gleich ist, besitzt jeder Quantenpunkt eine individuelle Abfallzeit für große Verzögerungszeiten $\Delta t \gg 0$. Diese nimmt tendenziell mit ansteigender Resonanzenergie ab. So wird für die hochenergetischen Quantenpunktresonanz (\triangle) eine Abfallzeit von 46 ps bestimmt. Für die Resonanz mittlerer Energie beträgt sie 65 ps. Die Resonanz, deren Linienform in Abb. 6.3(b) dargestellt ist, besitzt schließlich eine Abfallszeit von 165 ps.

Löst man den biexponentiellen Zerfall auf kurzen Zeitskalen genauer auf (Abb. 6.5(b)), so

dominiert der schnelle Zerfall die Reflektivitätsänderung auf den ersten 2 ps. Die Zeitkonstante des schnellen Zerfalls beträgt $T_a = 6$ ps. Für größere Verzögerungszeiten $\Delta t > 2$ ps bestimmt der langsame Zerfall mit der Zeitkonstante $T_1 = 165$ ps den Signalverlauf. Betrachtet man die Reflektivitätsänderung zu negativen Verzögerungszeiten $\Delta t < 0$, kann ebenfalls ein nichtverschwindendes Signal für Verzögerungszeiten bis unterhalb $\Delta t = -10$ ps detektiert werden. Der Abfall erfolgt exponentiell, die Zeitkonstante beträgt $T_n = 8$ ps. Alle Zeitkonstanten, T_n, T_a und T_1 sind deutlich größer als die Zeitauflösung des Experiments, die anhand der Kreuzkorrelation zwischen Anrege- und Abtastimpuls durch eine Faser gewonnen werden kann, deren Länge identisch mit der im Experiment eingesetzten ist (vgl. Abs. 4.3.3).

6.2.3 Spektrum der Reflektivitätsänderung

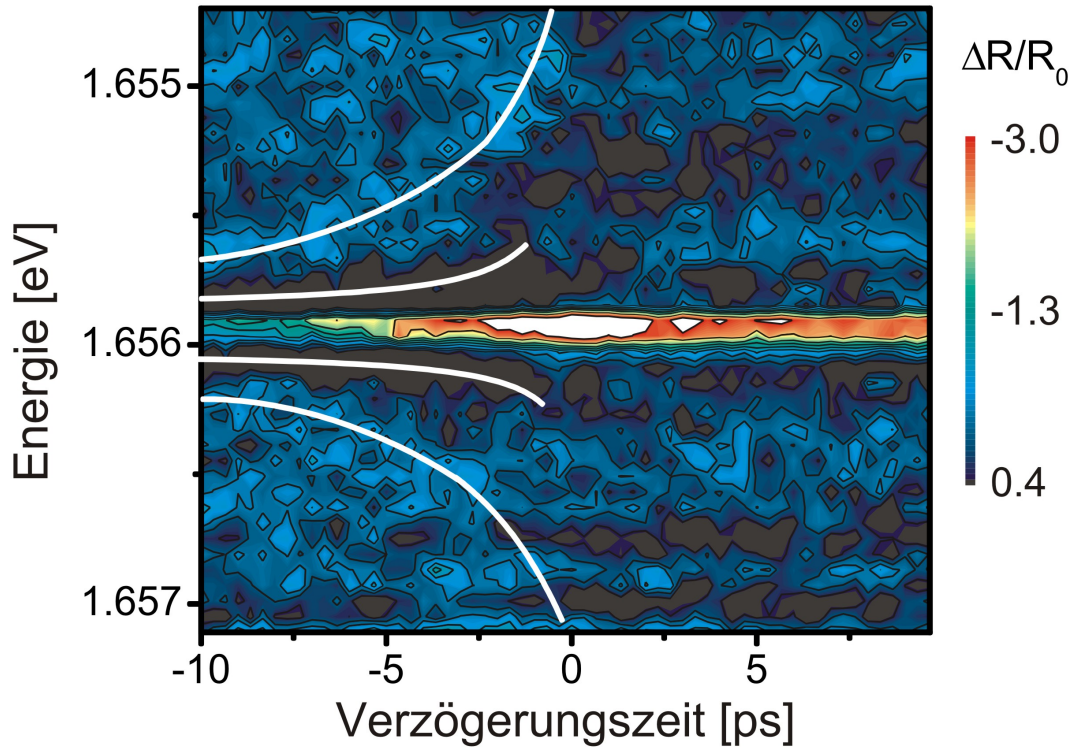


Abbildung 6.6: Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Verzögerungszeit und der Detektionsenergie. Während zu positiven Zeiten eine scharfe Reflektivitätsänderung detektiert wird, treten zu negativen Verzögerungszeiten spektrale Oszillationen um die Resonanz auf. Die Linien markieren die Position des ersten Maximums und Minimums der Oszillationen. Sie sind symmetrisch auf die Resonanz zentriert und auf einen Energiebereich von etwa 1 meV beschränkt. Die Energiedifferenz nimmt mit abnehmender Verzögerungszeit ab.

negative Verzögerungszeiten: $\Delta t < 0$:

Zur genaueren Untersuchung der im vorigen Abschnitt beschriebenen Signaldynamik werden Spektren der Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Verzögerungszeit Δt aufgenommen. Abb. 6.6 zeigt die spektral aufgelöste Reflektivitätsänderung der in Abb. 6.3

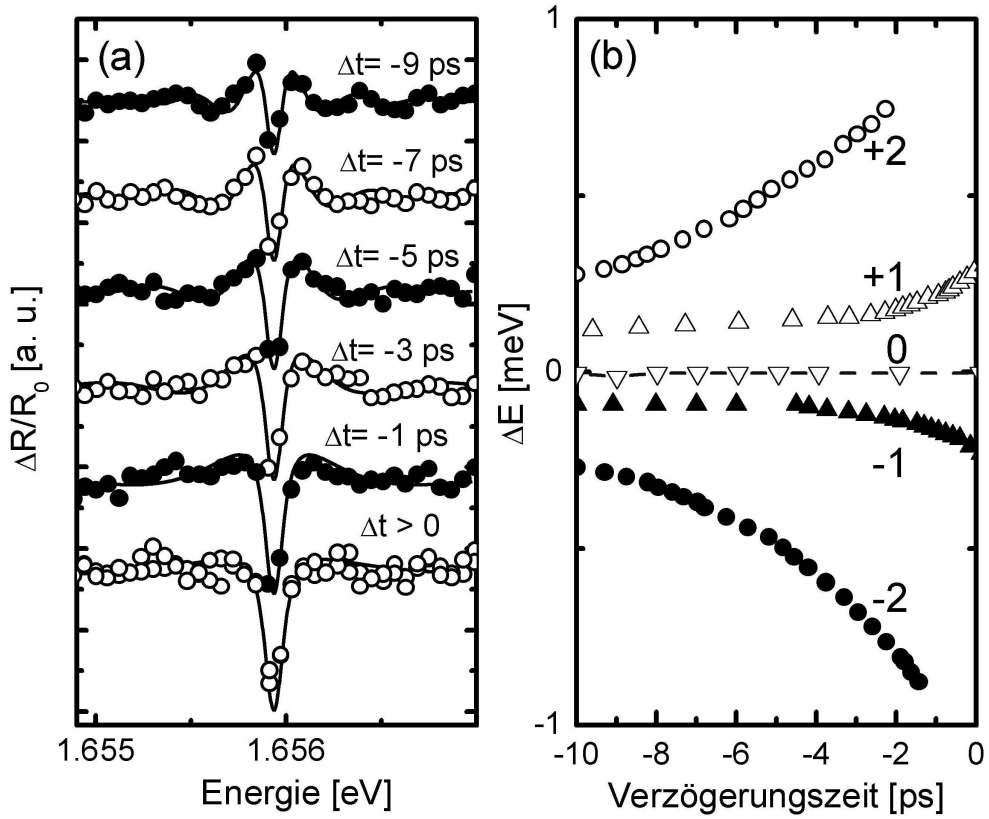


Abbildung 6.7: (a) Spektral aufgelöstes $\Delta R/R_0$ -Signal für unterschiedliche Verzögerungszeiten. Zu positiven Verzögerungszeiten wird eine lorentzförmige Reflexionsänderung detektiert. Bei negativen Verzögerungszeiten $\Delta t < 0$ treten neben einer lorentzförmigen Reflektivitätsänderung symmetrische spektrale Oszillationen auf. Die Energiepositionen der Minima und Maxima der Oszillationen sind verzögerungszeitabhängig und sind auf einen Bereich von 1 meV um die Resonanz beschränkt. (b) Energieposition der ersten Minima (± 1) und Maxima (± 2) der spektralen Oszillationen. Der spektrale Abstand der Minima und Maxima nimmt mit Abnahme der Zeitdifferenz zu. Die spektralen Oszillationen sind allerdings auf einen Bereich um 1 meV beschränkt.

dargestellten Quantenpunktresonanz in Abhängigkeit der Detektionsenergie E_{det} und der Verzögerungszeit Δt . Deutlich sichtbar ist das nichtverschwindende $\Delta R/R_0$ -Signal bei Detektion auf der Resonanzenergie des Quantenpunkts $E_{det} = E_{QD}$ zu positiven und negativen Verzögerungszeiten. Während zu positiven Zeiten außerhalb der Resonanzenergie keine weiteren Signale detektiert werden, sind für negative Verzögerungszeiten spektrale Oszillationen sichtbar (in Abb. 6.6 durch weiße Kurven gekennzeichnet). Die Oszillationen sind symmetrisch auf die Resonanz zentriert und besitzen eine starke Abhängigkeit von der Verzögerungszeit.

Deutlicher werden die spektralen Oszillationen durch Betrachtung der Spektren der Reflektivitätsänderung für einige feste Verzögerungszeiten. Abb. 6.7 zeigt $\Delta R/R_0$ -Spektren für fünf unterschiedliche Verzögerungszeiten. Während für positive Verzögerungszeiten eine einzige scharfe Resonanz im Spektrum detektiert wird, treten für negative Verzögerungszeiten (in Abb. 6.7(a) für $\Delta t = -1$ ps, -3 ps, -5 ps, -7 ps, -9 ps dargestellt) spektrale Oszillationen auf. Die Minima und Maxima der Oszillationen (Maxima durch \cdots gekennzeichnet) besitzen

eine symmetrische Struktur und sind auf die Resonanz zentriert. Auch die Amplituden der jeweiligen Minima und Maxima großer und kleiner Detektionsenergie sind im Rahmen der Empfindlichkeit der Messungen identisch.

Deutlich sichtbar ist auch die starke Abhängigkeit der Energieposition der Maxima und Minima von der Verzögerungszeit. Die Differenzenergie nimmt mit wachsendem zeitlichen Abstand zwischen Anrege- und Abtastimpuls ab. Eine genauere Betrachtung der Energieposition in Abhängigkeit der Verzögerungszeit ist in Abb. 6.7(b) dargestellt. Während die Energieposition der Resonanz (0) unabhängig von der Verzögerungszeit ist, nimmt der spektrale Abstand zwischen den Minima (± 1) und Maxima (± 2) mit Abnahme der Zeitdifferenz zwischen Abtast- und zeitlich verzögertem Anregeimpuls zu. Der spektrale Abstand ist auf einen Bereich von 1 meV um die Resonanz begrenzt.

positive Verzögerungszeiten: $\Delta t > 0$:

Das spektral aufgelöste $\Delta R/R$ -Signal für positive Verzögerungszeiten besitzt dagegen eine andere Charakteristik: Für positive Verzögerungszeiten wird ein näherungsweise lorentzförmiges $\Delta R/R$ -Signal bestimmt. Die Dynamik ist charakterisiert durch einen biexponentiellen Abfall, dessen kurzlebige Komponente bei spektraler Integration nicht zu beobachten ist. Die Zeitkonstante des schnellen Signalabfalls beträgt 6 ps und dominiert die Signaldynamik für $0 < \Delta t < 2$ ps. Für Verzögerungszeiten > 2 ps spielt es dagegen eine untergeordnete Rolle.

Dieser biexponentielle Zerfall wird für alle Quantenpunktresonanzen detektiert (vgl. Abb. 6.5(a)). Während die Lebensdauer für jeden Quantenpunkt individuell ist, ist die Zeitkonstante des schnellen Abfalls im Rahmen der Zeitauflösung für alle Quantenpunkte identisch.

6.2.4 Spektral integrierte Reflektivitätsänderung - Besetzungsdynamik

Eine Möglichkeit, den Beitrag der Ladungsträgerbesetzung optisch angeregter Quantenpunktzustände zu separieren, bietet der Vergleich zwischen spektral integrierter und aufgelöster Reflektivitätsänderung (vgl. Abs. 3.7). Dadaurch ermöglicht die Untersuchung der spektral integrierten Reflektivitätsänderung die direkte Vermessung der Besetzungsdynamik des Quantenpunktzustands. Abb. 6.8 zeigt die Zeitentwicklung des spektral dispergierten und integrierten $\Delta R/R_0$ -Signals bei der Quantenpunktresonanzenergie $E_{QD} = 1.6559$ eV. Die spektrale Integration wurde durch nachträgliche Aufsummierung der spektral aufgelösten Reflektivitätsänderung über einen Energiebereich von 1 meV durchgeführt. Das reduziert mögliche kohärente Effekte auf ein Zeitbereich von maximal 1.3 ps. Das spektral integrierte Signal zeigt einen einfach exponentiellen Zerfall für positive Verzögerungszeiten. Der biexponentielle Zerfall zu kurzen positiven Verzögerungszeiten und der exponentielle Abfall zu negativen Verzögerungszeiten verschwinden durch spektrale Integration nahezu vollständig. Die Zeitkonstante des langsamen exponentiellen Zerfalls ist durch die lange Zerfallskonstante des spektral dispergierten Signals gegeben. Sie beträgt für die Dynamik des dargestellten Quantenpunkts $T_1 = 165$ ps. Zu späten Verzögerungszeiten wird folglich direkt die Besetzungsdynamik eines einzelnen Quantenpunkts detektiert.

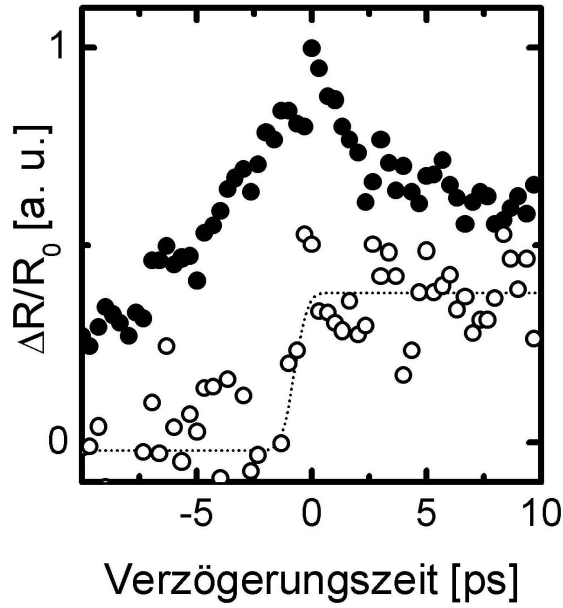


Abbildung 6.8: Vergleich der Transienten des Quantenpunktes bei spektral aufgelöster Detektion (•) und bei nachträglicher spektraler Integration über 1 meV zur Abtrennung der Ladungsträgerdynamik von polarisationsbeeinflussenden Effekten (◦). Während der biexponentielle Zerfall und die Signale zu negativen Verzögerungszeiten aufgrund der Mittelung verschwinden, bleibt die Dynamik zu langen Zeiten von der spektralen Mittelung unbeeinflusst.

6.2.5 Detektion der Kontinuumsreflektivitätsänderung - Bestimmung der Zeitauflösung

Die Zeitauflösung des Experiments lässt sich zusätzlich während des Experiments direkt aus den Spektren der Reflektivitätsänderung bestimmen. So wird für positive Verzögerungszeiten neben den scharfen Linien eine breitbandige Reflektivitätsänderung beobachtet. Diese Reflektivitätsänderung befindet sich im Spektrum zwischen den Komponenten der Reflektivitätsänderung, die durch die Quantenfilme **D** und **E** hervorgerufen werden. Abb. 6.9(a) zeigt diese breitbandige Reflektivitätsänderung aus Bereichen des Quantenfilms **E** mit einer Dicke von 19 ML. Die Zentralenergie beträgt 1.6525 eV bei einer inhomogenen Linienbreite des detektierten $\Delta R/R_0$ -Signals von 3.5 meV. Die Linienform der Reflektivitätsänderung ist näherungsweise gaußförmig. Die Linienbreite von 3.5 meV entspricht einer Polarisationsdephasierungszeit von 375 fs [Muk95]¹. Die zeitaufgelöste, spektral integrierte Reflektivitätsänderung dieser breitbandigen Resonanz besitzt zu positiven Verzögerungszeiten ein nichtverschwindendes Signal. Der Anstieg der Reflektivitätsänderung ist auf den Zeitnullpunkt zentriert und besitzt eine Anstiegszeit von 500 fs (Abb. 6.9 (b)).

Für positive Zeiten wird an dieser breitbandigen Resonanz ein anfänglicher exponentieller Abfall beobachtet. Die Zerfallszeit beträgt 2 ps. Ladungsträger relaxieren offensichtlich in niederenergetische Niveaus (Quantenpunktzustände bzw. in die tiefere Monolage). Neben

¹Die Polarisationsdephasierungszeit ergibt sich direkt aus der Fouriertransformation der Linienbreite:

$$T_{deph} = \frac{2\hbar}{\Delta E}$$

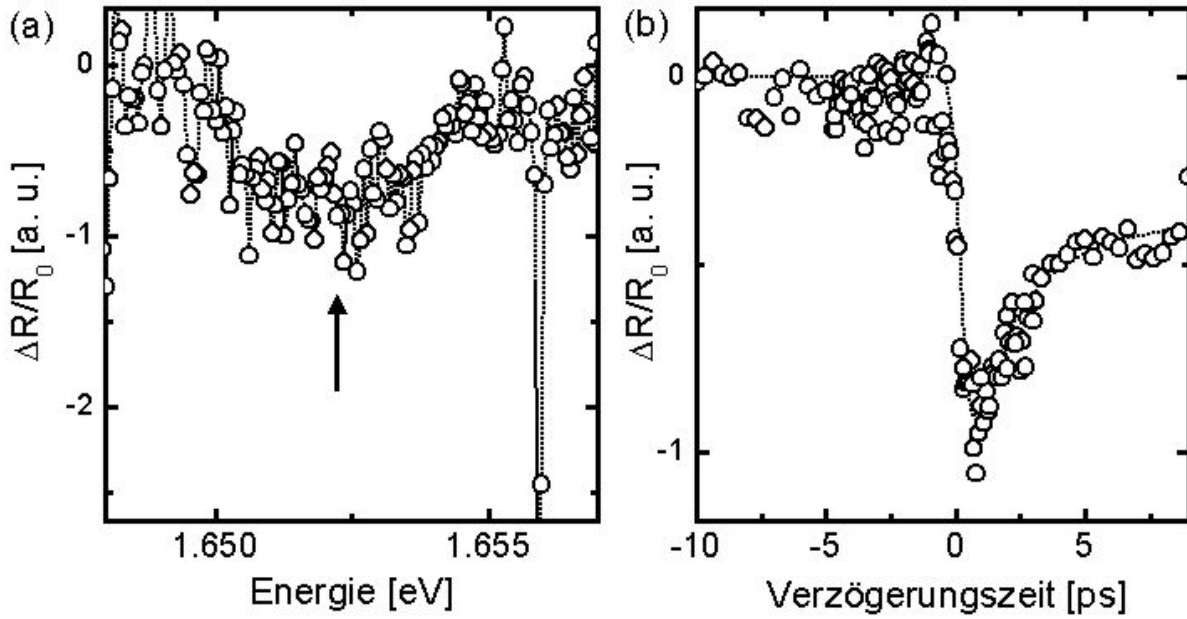


Abbildung 6.9: (a) $\Delta R/R_0$ -Spektrum der Bereiche der „dünnere“ Monolage des Quantenfilms **E** bei einer Verzögerungszeit $\Delta t = 3$ ps. Es wird eine breitbandige Reflektivitätsänderung mit einer Halbwertsbreite von 3.5 meV detektiert. (b) Reflektivitätsänderung $\Delta R/R_0$ in Abhängigkeit der Verzögerungszeit. Es wird ein schneller Abfall der Reflektivitätsänderung mit einer Abfallzeit von 500 fs beobachtet.

diesem schnellen Abfall wird zusätzlich ein deutlich langsamerer Abfall auf einer Zeitskala von 9 ps detektiert.

Zur Bestimmung der Zeitauflösung des Experiments wird ein einfaches Modell an die experimentell gewonnenen Daten angepasst. Dabei wird angenommen, dass der Anrege- und Abtastimpuls durch eine gauß-förmige Einhüllende mit einer identischen Zeitdauer von σ beschrieben werden kann. Die Bestimmung der Zeitauflösung erfolgt über die Betrachtung eines einzelnen Impulses $E(t)$, dessen Dauer durch $\sqrt{2}\sigma$ gegeben ist. Die Reflektivitätsänderung erfolgt instantan und nimmt anschliessend biexponentiell ab. Somit wird die Reflektivitätsänderung dieser über die Faltung der beiden Impulse mit der Signaldynamik bestimmt:

$$\Delta R/R(\Delta t) = E(\Delta t) \otimes (\Theta(\Delta t)(A \exp(-\Delta t/t_1) + (1 - A) \exp(-\Delta t/t_2))). \quad (6.4)$$

Aus Anpassung an das beobachtete Signal der Reflektivitätsänderung lassen sich Impulsdauern $\sigma \approx 150$ fs abschätzen. Da die Reflektivitätsänderung nicht notwendigerweise instantan ansteigt, gibt σ eine Obergrenze für die Zeitauflösung des Experiments an.

Die Ursache dieser Reflektivitätsänderung liegt in der Monolagenaufspaltung des Quantenfilms **E**. Bereits in PL-Emissionsexperimenten konnte bei einer Detektionsenergie von 1.65 eV die Emission aus Bereichen von 19 ML Dicke gefunden werden (Abs. 5.1). Diese wurden aufgrund der geringen PL-Emissionsintensität dem Quantenfilm **E** zugeschrieben. Dabei ist die unterschiedliche Detektionsenergie zwischen PL-Emission und Reflektivitätsänderung eine Folge der Stokes-Verschiebung bei 12 K [Chr90].

6.3 Signalentstehung

6.3.1 $\Delta t > 0$: Rekonstruktion der Polarisationsdynamik

Der Anregimpuls erzeugt in den Experimenten Elektronen-Lochpaare in Kontinuumszuständen des Quantenfilms: Die Überschussenergie beträgt dabei 27 meV. Die spektrale Form der Reflektivitätsänderung der isolierten Resonanzen kann für positive Verzögerungszeiten $\Delta t > 0$ im Rahmen der Messgenauigkeit durch eine lorentzförmige Linienform angepasst werden (vgl. Abb. 6.3). Eine Energieverschiebung zwischen PL-Emission und Spektrum der Reflektivitätsänderung wird nicht beobachtet. Es werden Reflektivitätsänderungen einzelner Quantenpunkte sowohl zu positiven als auch negativen Verzögerungszeiten beobachtet (vgl. Abb. 6.5). Zu positiven Verzögerungszeiten wird eine biexponentielle Abnahme der Reflektivitätsänderung gefunden. Die Zeitkonstante der langsam abfallenden Komponente beträgt 45 bis 165 ps. Die spektral integrierte Reflektivitätsänderung ist durch ein einfach exponentiell abfallendes Signal zu positiven Verzögerungszeiten gegeben. Die Zeitkonstante des Abfalls ist mit 45 bis 165 ps durch den langsamen exponentiellen Abfall im spektral aufgelösten Signal gegeben.

In Abs. 3.4.3 wurde dargestellt, dass die spektral aufgelöste Reflektivitätsänderung unter Vernachlässigung der endlichen Monochromatorauflösung mit Gln. 3.60

$$\Delta R(\Delta t) \propto 2 \cdot \text{Re}(\tilde{E}_R^*(\omega) \{ [\tilde{P}_{QD}(\omega, \Delta t) - \tilde{P}_{QD,0}(\omega)] e^{i\Delta\phi} \}) \quad (6.5)$$

über die Änderung der Quantenpunktpolarisation $\Delta P(\omega, \Delta t) = \tilde{P}_{QD}(\omega, \Delta t) - \tilde{P}_{QD,0}(\omega)$ und der Phasendifferenz $\Delta\phi$ bestimmt ist.

Änderung des Polarisationspektrums für $\Delta t > 0$

Zur Beobachtung einer nicht verschwindenden Reflektivitätsänderung ist eine Änderung des Polarisationspektrums $\Delta\tilde{P}(\omega, \Delta t)$ notwendig. Dabei ist $\tilde{P}_{QD}(\omega)$ die Fouriertransformierte von $P_{QD}(t)$. Nach Gln. 3.38 ist $P_{QD}(t)$ durch das Dipolmoment μ_{01} und die Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix p_{01} bestimmt:

$$P(t) = \text{Tr}[\mu(t)^* \rho(t)] = \mu_{01}^*(t) p_{01}(t) + \mu_{01}(t) p_{10}^*(t). \quad (6.6)$$

Daher ist eine Betrachtung der Polarisationsdynamik $P(t)$ für $\Delta t \gg 0$ unter folgenden Annahmen geeignet:

- Der untersuchte Eigenzustand des Quantenpunkts wird durch ein Zweiniveausystem in Dipolnäherung beschrieben. Das Dipolmoment μ wird als zeitlich konstant angenommen.
- Es findet eine Wechselwirkung mit dem nichtresonanten Anregimpuls zum Zeitpunkt t_{Pu} und dem resonanten Abtastimpuls zum Zeitpunkt t_{Pr} statt. Das Gesamtfeld ist durch $E(t)$ gegeben.
- Die Dephasierung der Polarisation wird durch einen phänomenologischen Zerfallsansatz mit der Dephasierungsrate γ beschrieben. γ wird als konstant angenommen.
- Der Anregimpuls erzeugt eine Besetzung $f_1^{(U)}$ in der Umgebung des Quantenpunkts. Im Folgenden wird die Umgebung durch ein zweites Zweiniveausystem mit einer sehr kurzen Dephasierungszeit $\gamma^{(U)} \ll \gamma$ simuliert. Die Energie des Übergangs entspricht der Zentralfrequenz des Anregimpulses. Eine Relaxation aus diesem Zweiniveausystem in den Quantenpunktzustand findet mit einer Relaxationsrate $\Gamma_R = 1/T_R$ statt. Dabei wird berücksichtigt,

dass das Kontinuum in unterschiedliche Quantenpunkte relaxieren kann. Der Anteil der Ladungsträger, der in den betrachteten Quantenpunkt relaxiert, ist durch die Konstante F_R bestimmt.

- Die Lebensdauer von Ladungsträgern im Quantenpunkt-Eigenzustand ist ebenfalls phänomenologisch über eine Zerfallsrate Γ bestimmt. Γ beinhaltet sowohl strahlende Rekombination Γ_{rad} , als auch Relaxationszerfall Γ_{rel} und zusätzliche nichtstrahlende Zerfallskomponenten Γ_{nr} :

$$\Gamma = \Gamma_{rad} + \Gamma_{nr} + \Gamma_{rel}. \quad (6.7)$$

Unter diesen Voraussetzungen kann die zeitliche Entwicklung der Dichtematrix ρ auf Basis modifizierter optischer Blochgleichungen inklusive Ladungsträgerrelaxation im Dichtematrixformalismus beschrieben werden [Sha02]:

$$\begin{aligned} \dot{f}_1^{(U)} &= -\dot{f}_0^{(U)} = -\Gamma_R f_1 - \frac{i}{\hbar} \mu_{01}^{(U)} E \left(p_{01}^{(U)} - p_{10}^{(U)} \right) \\ \dot{p}_{01}^{(U)} &= \gamma^{(U)} p_{01}^{(U)} + i\omega_0^{(U)} p_{01}^{(U)} + \frac{i}{\hbar} \mu_{01}^{(U)} E \left(f_1^{(U)} - f_0^{(U)} \right) \\ \dot{f}_1 &= -\dot{f}_0 = -\Gamma f_1 + \frac{i}{\hbar} \mu_{01} E (p_{01} - p_{10}) + F_R \cdot \Gamma_R f_1^{(U)} (1 - 2f_1) \\ \dot{p}_{01} &= -\frac{i}{\hbar} \mu_{01} E (f_1 - f_0). \end{aligned} \quad (6.8)$$

Die Absorption des Anregeimpulses führt zu dem in Abb. 6.10 (a) dargestellten Bild. Der Anregeimpuls erzeugt eine Besetzung des Umgebungszustandes $f^{(U)}$. Die Polarisation des Übergangs ($p_{01}^{(U)(t)}$) kann aufgrund der schnellen Dephasierung ($\gamma^{(U)} \ll \gamma$) vernachlässigt werden. Ladungsträgerrelaxation in unterschiedliche Quantenpunkte führt zu einer Abnahme dieser Besetzung mit der Relaxationsrate Γ_R . Folglich lässt sich die Besetzung der Umgebung unter Vernachlässigung der Zeitdauer des Anregeimpulses angeben zu:

$$f^{(U)}(t) \propto \Theta(t - t_{Pu}) e^{-\Gamma_R(t-t_{Pu})}. \quad (6.9)$$

Aufgrund der Ladungsträgerrelaxation wird eine Besetzung in dem Quantenpunktzweiniveausystem erzeugt. Die Besetzungsdynamik des Quantenpunkts kann beschrieben werden durch:

$$f_1(t) = F_R \Theta(t_{Pu}) \left(1 - e^{-\Gamma_R(t-t_{Pu})} \right) e^{-\Gamma(t-t_{Pu})}. \quad (6.10)$$

Durch den nichtresonanten Anregeimpuls wird keine Polarisation des Quantenpunktübergangs getrieben.

Zum Zeitpunkt $\Delta t = t_{Pu} - t_{Pr} \gg 0$ wechselwirkt der Abtastimpuls mit dem derart geänderten Zweiniveausystem und treibt in diesem eine Polarisation. Nach Gln. 6.8 ist die Amplitude von p_{01} unter Vernachlässigung der endlichen Abtastimpulsdauer direkt proportional zur Besetzungsdichte des Quantenpunkts zum Zeitpunkt Δt :

$$p_{01}(\Delta t) \propto \frac{i}{\hbar} \mu_{01} E (f_1(\Delta t) - f_0(\Delta t)). \quad (6.11)$$

Nach der Wechselwirkung zerfällt p_{01} mit der zeitlich konstanten Dephasierungsrate γ . Folglich lässt sich die Dynamik von p_{01} für $\Delta t \gg 0$ unter Vernachlässigung der endlichen Abtastimpulsdauer beschreiben durch:

$$p_{01}(t, \Delta t) \propto \frac{i}{\hbar} \mu_{01} \Theta(t_{Pr}) (f_1(\Delta t) - f_0(\Delta t)) e^{-\gamma(t-t_{Pr})} e^{-i\omega_0(t-t_{Pr})} \quad (6.12)$$

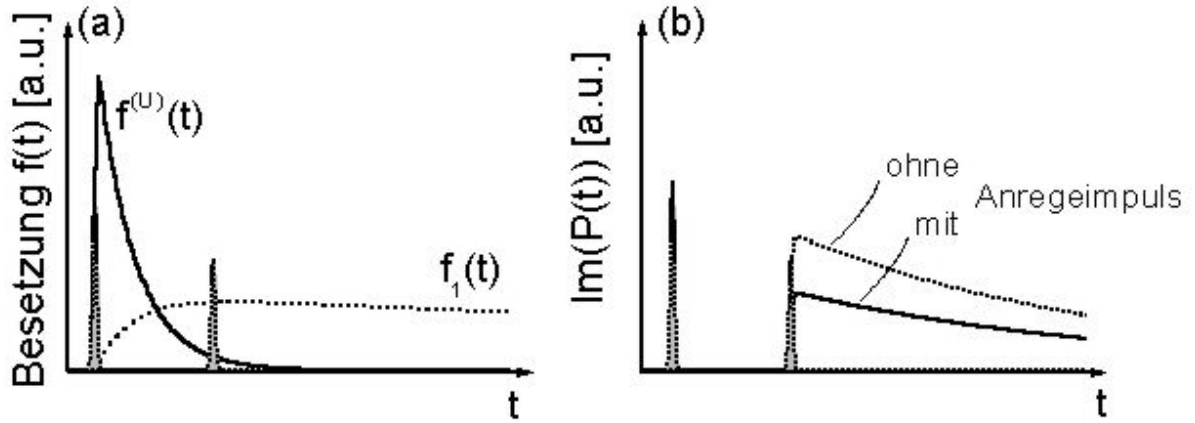


Abbildung 6.10: (a) Dynamik der Besetzungsdichte des angeregten delokalisierten Zustands ($f^{(U)}(t)$) und lokalisierten Zustands ($f_1(t)$) nach Absorption des Anregeimpulses. (b) Zeitentwicklung der Polarisation der Quantenpunktresonanz nach Wechselwirkung mit Anrege- und Abtastimpuls für positive Verzögerungszeiten. $P(t)$ ist dabei proportional zur Besetzungsdichte $f_1(t_{Pu} - t_{Pr})$. (···) Polarisationsdynamik ohne Absorption des Anregeimpulses.

Die Dynamik von $P(t)$ ist folglich nach Gln. 6.6 bestimmt durch:

$$P(t, \Delta t) \propto \left\{ \mu_{01}^* i \frac{\mu_{01}}{\hbar} \Theta(t_{Pr}) ((f_1(\Delta t) - f_0(\Delta t)) e^{-\gamma(t-t_{Pr})} + c.c) \right\} \cdot e^{-i\omega_0(t-t_{Pr})} \quad (6.13)$$

Das Spektrum der Polarisation $P(\omega, \Delta t)$ ergibt sich direkt aus der Fouriertransformation von $P(t, \Delta t)$

$$\tilde{P}(\omega, \Delta t) \propto i \cdot \frac{|\mu_{01}|^2}{\hbar} ((f_1(\Delta t) - f_0(\Delta t)) \cdot \frac{1}{\gamma - i(\omega - \omega_0)}) \quad (6.14)$$

und folglich beträgt die Differenz des Polarisationspektrums $\Delta P(\omega, \Delta t)$

$$\Delta P(\omega, \Delta t) \propto i \cdot \frac{|\mu_{01}|^2}{\hbar} ((f_1(\Delta t) - f_0(\Delta t) + 1) \cdot \frac{1}{\gamma - i(\omega - \omega_0)}), \quad (6.15)$$

da bei Abwesenheit des Anregeimpuls gilt: $f_0 = 1 - f_1 = 1$. Der Imaginärteil dieses Polarisationspektrums ($\text{Im}(\Delta P(\omega, \Delta t))$) ist lorentzförmig, der Realteil ($\text{Re}(\Delta P(\omega, \Delta t))$) weist eine dispersive Form auf.

Experimentell wird für $\Delta t \gg 0$ ein lorentzförmiges Spektrum der Reflektivitätsänderung beobachtet. Dies legt nahe, dass der Imaginärteil des Polarisationspektrums das Spektrum der Reflektivitätsänderung bestimmt. Die durchgeführten Experimente an diesem Quantenfilm ist folglich direkt sensitiv auf Änderungen des Imaginärteils der Quantenpunktpolarisation:

$$\Delta R(\omega, \Delta t) \propto \tilde{E}_R(\omega) \text{Im}(\tilde{P}(\omega t) - \tilde{P}(\omega)) \quad (6.16)$$

6.3.2 Phasenfaktor

Für $\Delta t \gg 0$ wird in den Spektren der Reflektivitätsänderung der Imaginärteil der Polarisation detektiert. Nach Gln. 3.61 (Abs. 3.4.3) gilt für den untersuchten Quantenfilm folglich

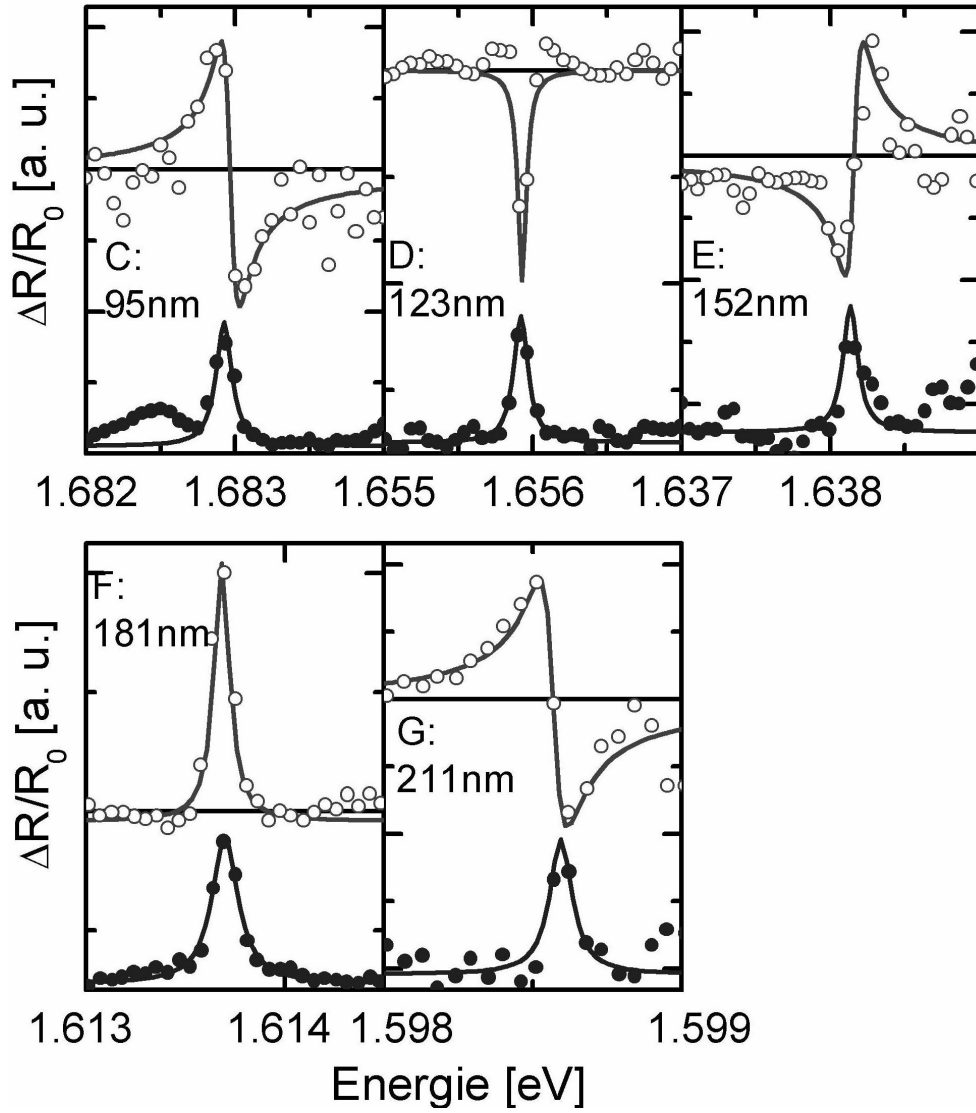


Abbildung 6.11: Vergleich der anregeimpulsinduzierten Reflexionsänderung von Quantenpunkten unterschiedlicher Tiefe bei $\Delta t = 3$ ps. Die Quantenfilme sind so angeordnet, dass zwischen jedem eine Tiefenänderung von 27 nm existiert. Dies entspricht einer zusätzlichen Phasendifferenz von $\pi/2$ bzw. 90° (vgl. Abs. 3.4.3.). Die zusätzliche Phasenverschiebung führt zu einem periodischen Verhalten. Für den Quantenfilm C wird ein dispersives ΔR beobachtet; für den Quantenfilm D ein lorentzförmiges mit **negativem** Vorzeichen. Quantenfilm E und G weisen wieder ein dispersives $\Delta R/R$ -Signal auf.

QW	QD-Resonanzenergie [eV]	Tiefe T [nm]	$\Delta\phi$ [in π]	Linienform	Vorzeichen $\Delta R/R_0$
C	1.683	95	0	<i>disp.</i>	positiv
D	1.656	123	0.5	<i>lorentzf.</i>	negativ
E	1.638	152	0.96	<i>disp.</i>	negativ
F	1.614	181	1.42	<i>lorentzf.</i>	positiv
G	1.599	211	1.92	<i>disp.</i>	positiv

Tabelle 6.1: Aus Gln. 3.56 bestimmter Phasenfaktor $\Delta\phi$ und die dadurch erwartete Linienform der Reflektivitätsänderung der unterschiedlichen Quantenfilme

näherungsweise:

$$\Delta R(\omega, \Delta t) \propto \tilde{E}_R(\omega) \operatorname{Im}(\Delta \tilde{P}(\omega, \Delta t)) = \tilde{E}_R(\omega) \operatorname{Im}(\tilde{P}(\omega, \Delta t) - \tilde{P}(\omega)), \quad (6.17)$$

Dies setzt voraus, dass $\Delta\phi \simeq [(2n+1)/2] \cdot \pi$, $n \in \mathbb{N}$ ist (vgl. Abs. 3.4.3).

Der Einfluss des Phasenfaktors $\Delta\phi$ auf das Reflexionsspektrum eines Quantenpunkts wurde bereits in Abs. 3.4.3 anhand eines einfachen Modells ausführlich analysiert. So wurde dargestellt, dass $\Delta\phi$ neben einer Abhängigkeit von der Zentralfrequenz des eingestrahnten Laserlichts auch eine starke Abhängigkeit von der Tiefe T, in dem der Quantenpunkt unter der Oberfläche vergraben ist, besitzt. Anhand des einfachen Modells bestehend aus zwei Dipolen wurde gezeigt, dass für Tiefen $T > 40$ nm die Phasenverschiebung im Wesentlichen linear mit der Tiefe zunimmt:

$$\Delta\phi(T) = \frac{2\pi n}{\lambda} \cdot T + \phi_0. \quad (6.18)$$

Für den untersuchten Quantenfilm **D**, der sich in einer Tiefe $T = 123$ nm befindet, wurde in guter Übereinstimmung mit der experimentellen Beobachtung anhand dieses einfachen Modells eine Phasendifferenz von $\pi/2$ bestimmt.

Zur Überprüfung dieses einfachen Modells wird die Tiefenabhängigkeit der Reflektivitätsänderung ($\Delta R(\Delta t)/R$) für unterschiedliche Quantenfilme untersucht. Hierfür wird die Reflexionsänderung von fünf unterschiedlichen Quantenfilmen bei einer Verzögerungszeit $\Delta t = 3$ ps experimentell bestimmt. Es sind dies die Quantenfilme **C** bis **G**, die in einer Tiefe von 95 bis 211 nm unter der Oberfläche vergraben sind (vgl. Tab. 6.1). Der Tiefenunterschied zwischen den einzelnen Quantenfilmen beträgt jeweils 27 nm (vgl. Tab. 4.1). Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Resonanzenergien entspricht dies nach Gln. 6.18 jeweils einer optischen Phasendifferenz von ungefähr $\Delta\phi \simeq \pi/2$. Ein Übergang von dispersiven zu lorentzförmigen Spektrum wird erwartet. Die für diese Quantenfilme errechneten Phasenfaktoren und Linienformen sind in Tab. 6.1 dargestellt.

Abb. 6.11 zeigt die Reflektivitätsänderungen jeweils einer Quantenpunktresonanz der unterschiedlichen Quantenfilme. Die Abbildung macht die gute Übereinstimmung zwischen den theoretischen Erwartungen dieses einfachen Modells zu den experimentell detektierten Linienformen deutlich. Während für Quantenpunkte in den Filmen **C**, **E** und **G** eine dispersive Form beobachtet wird, besitzen die Quantenfilme **D** und **F** entsprechend dem theoretischen Modell ein lorentzförmiges Spektrum mit unterschiedlichem Vorzeichen. So ist für den Quantenfilm **G** $\Delta R/R_0$ positiv, im Quantenfilm **D** negativ. Dieser Vorzeichenwechsel wird auch

zwischen den Resonanzen des Quantenfilms **C** und **E** bzw. zwischen **E** und **G** gefunden. Allen diesen Resonanzen ist eigen, dass $\Delta R/R_0$ zentriert ist auf die lorentzförmige Linie der PL-Emission. Eine Verschiebung der Energie kann deswegen im Rahmen der spektralen Auflösung des Experiments ausgeschlossen werden.

Es zeigt sich folglich, dass das in Abs. 3.4.3 beschriebene Modell für eine Quantenfilmtiefe über 40 nm eine gute quantitative Beschreibung der Phasendifferenz $\Delta\phi$ zwischen von der Probe reflektierten Feld $\tilde{E}_R(\omega)$ und der Quantenpunktpolarisation $\tilde{P}(\omega)$ gibt.

Zu erwähnen ist, dass die Tiefe von 40 nm in GaAs ausgezeichnet ist durch den Übergang von dominanten Nahfeld-Komponenten zu Fernfeld-Komponenten des elektrischen Felds eines Dipols (vgl. Abs. 3.2, Abs. 3.4.3). Für Tiefen unterhalb 40 nm wird nach Gln. 3.56 und Abb. 3.13 ein Abweichen von der oben beschriebenen linearen Abhängigkeit der Phasendifferenz $\Delta\phi$ von der Tiefe erwartet. fs-Experimente an lokalisierten Exzitonen in dieser Tiefe konnten allerdings bislang noch nicht durchgeführt werden, so dass der Nachweis hierzu noch aussteht.

6.3.3 $\Delta t < 0$: Rekonstruktion der Polarisationsdynamik

Im Unterschied zu späten positiven Verzögerungszeiten, wo spektral integrierte und aufgelöste Detektion ein identisches Bild ergeben, weisen die Spektren der Reflektivitätsänderung gerade im Zeitbereich $\Delta t < 2$ ps auf ein deutlich anderes Verhalten hin. Es werden spektrale Oszillationen und ein biexponentieller Abfall in spektral aufgelöster Detektion bestimmt, die durch spektrale Integration über einen Energiebereich von 2 meV vollständig verschwinden. Spektrale Oszillationen für negative Verzögerungszeiten wurden bereits mehrfach in quasi 2D-Systemen beobachtet [Mys86, Flu87, Jof88, Kno89, Wan94].

Aus Kenntnis der Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Verzögerungszeit Δt , sowie der zeitlichen Struktur der verwendeten Lichtimpulse ist eine vollständige Rekonstruktion der Polarisationsdynamik $P(t)$ möglich.

In Abs. 6.3 wurde dargestellt, dass die Reflexionsänderung direkt durch den Imaginärteil der Polarisierung bestimmt ist. Das Spektrum der Reflexionsänderung ist folglich gegeben durch (vgl. Abs. 3.4.3, Gln. 3.61):

$$\Delta R(\omega, \Delta t) \propto \tilde{E}_R(\omega) \text{Im}(\Delta \tilde{P}(\omega, \Delta t)) = \tilde{E}_R(\omega) \text{Im}(\tilde{P}(\omega, \Delta t) - \tilde{P}(\omega)), \quad (6.19)$$

wobei $\tilde{P}(\omega)$ die Fouriertransformierte der Quantenpunktpolarisation $P(t)$ ist.

Für späte positive Verzögerungszeiten ($\Delta t \gg 0$) wurde die besetzungsinduzierte Reflexionsänderung bestimmt. Das Spektrum weist eine lorentzförmige Linienform auf. Eine spektrale Verbreiterung, sichtbar durch spektral symmetrische Oszillationen, oder eine Energieverschiebung wird nicht beobachtet. Daher kann geschlossen werden, dass der Imaginärteil des Spektrums der Polarisierung ohne Absorption des Anregimpulses im Wesentlichen durch eine lorentzförmige Linie beschrieben wird:

$$\tilde{P}_0(\omega) = \frac{P_0}{(\omega - \omega_0) + i\gamma}$$

Durch Rücktransformation kann folglich direkt die Polarisationsdynamik rekonstruiert werden. Bei resonantem Abtastimpuls wird dabei die Polarisationsdynamik durch die Faltung

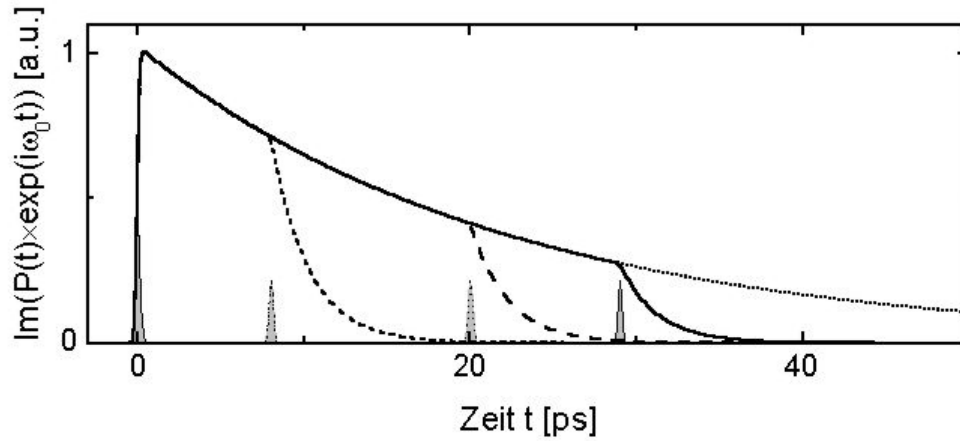


Abbildung 6.12: Aus den Spektren der Reflektivitätsänderung $\Delta R/R_0$ rekonstruierte Einhüllende der Polarisationsdynamik $P(t, \Delta t)$ für drei negative Verzögerungszeiten Δt . (\cdots) Einhüllende der Polarisation $P(t)$ bei Abwesenheit des Anregimpulses.

zwischen Einhüllender des elektrischen Feldes des Abtastimpulses $E_{Pr}(t)$, der die Polarisati-on treibt, und einer zeitlich mit der Dephasierungsrate γ exponentiell abfallenden Funktion beschrieben (vgl. Abb. 6.12):

$$P_0(t) = (E_{Pr}(t) \otimes P_0 \cdot \Theta(t)e^{-\gamma t})e^{-i\omega_0 t} \quad (6.20)$$

Die Wechselwirkung des Anregimpulses mit der Probe führt zu Änderungen des Reflexi-onsspektrums. So werden für negative Verzögerungszeiten ($\Delta t < 0$) spektral symmetrische Oszillationen bei der Bestimmung des Spektrums der Reflektivitätsänderung beobachtet. Zusammen mit $\tilde{P}_0(\omega)$ kann durch Rücktransformation direkt die Polarisationsdynamik $P(t, \Delta t)$ bestimmt werden.

Abb. 6.12 zeigt die Rekonstruktion der Polarisationsdynamik $P(t, \Delta t)$ für drei verschiedene negative Verzögerungszeiten $\Delta t < 0$. Die Wechselwirkung mit dem Anregimpuls führt folglich zu einer Abnahme der Polarisationsamplitude. Diese Abnahme erfolgt nicht instan-tan, sondern es wird vielmehr eine erhöhte Zerfallsrate der Polarisation beobachtet. Dieser nicht instantane Prozess wird auch in den Spektren der Reflektivitätsänderung deutlich. Er manifestiert sich in der Begrenzung der detektierten Oszillationen auf einen schmalbandigen Bereich um die Resonanz. Im Gegensatz dazu wird für ein instantanes „Ausschalten“ der Polarisation keine derartige Beschränkung beobachtet [Ham95].

Als Maß für die erhöhte Polarisationszerfallszeit dient die spektrale Beschränkung der Ener-giedifferenz der Oszillationen. Über diese Beschränkung auf unter 1 meV kann eine vermin-derte Zerfallszeit von ungefähr 2–3 ps abgeschätzt werden.

6.3.4 Ursachen der Polarisationsdynamik für $\Delta t < 0$

Die Wechselwirkung zu negativen Verzögerungszeiten $\Delta t < 0$ führt zu einer Erhöhung der Zerfallsrate der makroskopischen Quantenpunktpolarisation $P(t)$. Dabei ist $P(t)$ bestimmt durch:

$$P(t) = \text{Tr}[\mu(t)^* \rho(t)] = \mu_{01}^*(t)p_{01}(t) + \mu_{01}(t)p_{10}^*(t). \quad (6.21)$$

Die Änderung der Zerfallsrate kann folglich durch eine Änderung des Dipolmoments μ oder durch Änderung der Nichtdiagonalelemente p_{01} der Dichtematrix ρ hervorgerufen werden. Zur Betrachtung möglicher Änderungen der Dichtematrix ρ wird das in Abs. 6.3 beschriebene Modell herangezogen. Im Unterschied zur dortigen Betrachtung werden folgende Annahmen gemacht:

- Das Dipolmoment kann sich zeitlich ändern $\mu = \mu(t)$.
- Die freie Dephasierung der Polarisation wird durch einen phänomenologischen Zerfallsansatz mit der Dephasierungsrate γ beschrieben.
- Ein mögliches anregungsinduziertes Dephasieren (EID) wird durch eine zusätzliche Streurrate γ_{EID} berücksichtigt. Dadurch ergibt sich eine effektive, von der Besetzung der Umgebung ($f_1^{(U)}$) abhängige Streurrate $1/T_{deph} = \gamma_{deph} = \gamma + \gamma_{EID}f_1^{(U)}$ (vgl. Abs. 3.6, Gln. 3.79).

Unter diesen Voraussetzungen kann die zeitliche Entwicklung der Dichtematrix ρ auf Basis modifizierter optischer Blochgleichungen inklusive Korrekturen für anregungsinduziertes Dephasieren (EID), Ladungsträgerrelaxation und einer zeitabhängigen Reduktion des Dipolmoments $\mu_{01} = \mu_{01}(t)$ im Dichtematrixformalismus beschrieben werden [Sha02]:

$$\begin{aligned}
 \dot{f}_1^{(U)} &= -\dot{f}_0^{(U)} = -\Gamma_R f_1 - \frac{i}{\hbar} \mu_{01}^{(U)} E \left(p_{01}^{(U)} - p_{10}^{(U)} \right) \\
 \dot{p}_{01}^{(U)} &= \gamma^{(U)} p_{01}^{(U)} + i\omega_0^{(U)} p_{01}^{(U)} + \frac{i}{\hbar} \mu_{01}^{(U)} E \left(f_1^{(U)} - f_0^{(U)} \right) \\
 \dot{f}_1 &= -\dot{f}_0 = -\Gamma f_1 + \frac{i}{\hbar} \mu_{01} E (p_{01} - p_{10}) + F_R \cdot \Gamma_R f_1 (1 - 2f_1) \\
 \dot{p}_{01} &= - \underbrace{\left(\gamma + \gamma_{EID} f_1^{(U)} \right)}_{\gamma_{deph}} p_{01} + i\omega_0 p_{01} - \frac{i}{\hbar} \mu_{01} E (f_1 - f_0)
 \end{aligned} \tag{6.22}$$

In den Gleichungen wurde von Renormierungen der Energie und Felder (vgl. Abs. 3.5.2) abgesehen, da in den Experimenten keine Energieverschiebungen beobachtet werden.

Nichtlineare optische Effekte können folglich detektiert werden, falls sich ω_0 , f_1 oder γ_{deph} ändert (vgl. Abs. 3.6).

- Eine anregeimpulsinduzierte Änderung der Besetzung f_1 spielt ausschließlich für positive Verzögerungszeiten eine Rolle. Eine anregeimpulsinduzierte Ladungsträgerbesetzung zu positiven Verzögerungszeiten führt zu einer Verminderung der Polarisationsamplitude, ändert aber nicht deren Zeitstruktur. Die Beobachtung von Reflektivitätsänderung zu negativen Verzögerungszeiten kann folglich nicht durch eine anregeimpulsinduzierte Besetzung beschrieben werden.
- Eine Änderung der Resonanzfrequenz ω_0 z. B. durch Energierenormierungen nach Absorption des Anregeimpulses führt zu einer spektralen Verschiebung der Resonanz. Die Oszillationsfrequenz der Polarisation ändert sich, nicht jedoch deren Zerfallsrate. Auf dem Spektrum der Reflektivitätsänderung wird ein dispersives Signal detektiert. Auftretende Oszillationen sind antisymmetrisch auf die Resonanz zentriert. Derartige disperse Signale treten ebenfalls bei Detektion des *ac-Stark*-Effekts auf, die an Quantenfilmen bereits mehrfach detektiert wurden [Mys86, Kno89]. Auch an einzelnen Quantenpunkten wurde dieser Effekt bereits experimentell beobachtet [Mül02a]. Im Gegensatz dazu ist das Spektrum der Reflektivitätsänderung lorentzförmig und

besitzt zu negativen Verzögerungszeiten spektral symmetrische Oszillationen. Folglich kann eine Änderung der Resonanzfrequenz als Ursache für die beobachtete Reflektivitätsänderung ausgeschlossen werden.

Nach Gln. 6.21 kann die in Abb. 6.12 dargestellte Polarisationsdynamik in zwei unterschiedlichen Ursachen begründet sein:

- Eine zeitabhängige Änderung des Dipolmoments kann theoretisch zu der in Abb. 6.12 rekonstruierten Polarisationsdynamik zu negativen Verzögerungszeiten führen. Aufgrund von Gln. 3.38 wird die makroskopische Polarisation des Quantenpunktübergangs durch das Produkt aus Dipolmoment und den Nichtdiagonalelementen der Dichtematrix beschrieben. Die geeignete Wahl von μ_{01} führt somit zu der in Abb. 6.12 dargestellten Polarisationsdynamik.
- Eine Änderung der Dephasierungsrate $\gamma_{deph} = \gamma + \gamma_{EID}f_1^{(U)}$ erhöht die Polarisationszerfallsrate nach Wechselwirkung mit dem Anregimpuls und vermindert so deren Dephasierungszeit. Eine Polarisationsdynamik, wie in Abb. 6.12 dargestellt ist möglich. In Abs. 3.6 wurde dargestellt, dass bei Detektion des Imaginärteils der Polarisation ($\Delta R/R_0 \propto \text{Im}(\Delta \tilde{P}(\omega, \Delta t))$) für negative Verzögerungszeiten spektral symmetrische Oszillationen auf dem Spektrum der Reflektivitätsänderung beobachtet werden können (vgl. Abb. 3.19).

Folglich existieren zwei unterschiedliche physikalische Mechanismen, die die Signaldynamik für negative Verzögerungszeiten beschreiben können: eine zeitabhängige Abnahme des Dipolmoments μ_{01} und ein anregungsinduziertes Dephasieren, d. h. ein erhöhter Zerfall der mikroskopischen Polarisation p_{01} . In den folgenden Abschnitten wird dargelegt, dass der für die Interpretation der Experimente entscheidende Mechanismus das anregungsinduzierte Dephasieren ist.

Abnahme des Dipolmoments μ_{01}

Oftmals wurde die Beobachtung spektral symmetrischer Oszillationen einer instantanen Abnahme der Oszillatorstärke $\mu E(f_1 - f_0)$ zugeschrieben [Jof88, Flu87]. Obwohl Linienverbreiterungen detektiert wurden, wurde angenommen, dass die Besetzung von Zuständen nahe der Bandkante den zulässigen Phasenraum für Exzitonen vermindert [SR85]. Wake *et al.* hingegen zeigten, dass Linienverbreiterung der dominante Mechanismus für dieses Ausbleichen der Absorption ist, während die spektral integrierte Absorption konstant blieb [Wak92]. Auch für einen nahezu homogenen Quantenfilm wurde als dominante Vielteilchenwechselwirkung ein anregungsinduziertes Dephasieren und nicht eine Abnahme der Oszillatorstärke bestimmt [Wan93, Jah96b].

Gegen eine Abnahme des Dipolmoments des Quantenpunkts sprechen zusätzlich mehrere Gründe: So erscheint es unklar, welche Mechanismen eine Abnahme des Dipolmoments ohne Energieverschiebung hervorrufen sollen. Das Dipolmoment müsste auf einer Zeitskala von 2–3 ps stark abnehmen. Gleichzeitig gibt die spektrale Auflösung eine Begrenzung der möglichen Energieverschiebung auf unter 100 μeV an.

Das Dipolmoment bestimmt sich aus dem Überlapp der am Übergang beteiligten Wellenfunktionen: $\mu_{QD} \propto \langle \psi_e | e \mathbf{r} | \psi_h \rangle$ [Hau98]. Eine Änderung des Dipolmoments erfolgt über eine Änderung der beteiligten Wellenfunktionen, beispielsweise durch Änderung des räumlichen

Überlapps. Gleichzeitig sind die Wellenfunktionen maßgeblich an der Stärke der Coulomb-Wechselwirkung beteiligt:

$$V_C^{(QD)} \propto \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \psi_e^*(\mathbf{r}) \psi_h^*(\mathbf{r}) \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \psi_e(\mathbf{r}') \psi_h(\mathbf{r}').$$

So ist es unwahrscheinlich, dass eine Änderung des Dipolmoments nicht zugleich auch eine Änderung der Resonanzenergie hervorruft. Dies bestätigen Untersuchungen an dünnen Quantenfilmen und an Quantenpunkten. Aus Experimenten an dünnen Quantenfilmen ist bekannt, dass die spektrale Begrenzung von weniger als 1 % der Exzitonenbindungsenergie deutlich geringer ist als die typische Wechselwirkungsenergie, die für eine drastische Änderung der Oszillatorstärke und damit auch des Dipolmoments notwendig ist [Mil85]. In Quantenfilmen unterschiedlicher Dicke wurden bereits bei geringen Anregungsdichten Energieverschiebungen beobachtet, ohne dass eine Abnahme der Oszillatorstärke festgestellt werden konnte [Wak92]. An Quantenpunkten wurde als dominanter Einfluss von Ladungen der Umgebung eine spektrale Verschiebung bestimmt, die sich oftmals als spektrale Diffusion zeigt [Rob00].

Einen weiteren klaren Hinweis, der gegen eine Abnahme des Dipolmoments spricht, ergibt sich aus dem detektierten Signal für positive Verzögerungszeiten. Gerade in einem Zeitbereich $0 < \Delta t < 3$ ps sollte die nicht-instantane Abnahme zu einer zusätzlichen zeitabhängigen Erhöhung der Reflektivitätsänderung führen. Das Dipolmoment und dadurch die makroskopische Polarisation $P(t)$ nimmt nach Absorption des Anregeimpulses nicht instantan ein Minimum an, sondern fällt langsam ab. Diese Signaldynamik, welche im Folgenden anhand einer Modellsimulation verdeutlicht wird, schließt die Abnahme des Dipolmoments als dominante Ursache für die beobachtete Reflektivitätsänderung aus.

Modellbetrachtung - Ausbleichen des Dipolmoments

Im Folgenden wird der Einfluss einer Abnahme des Dipolmoments auf das Spektrum der Reflektivitätsänderung anhand einer Modellsimulation untersucht. Dabei wird berücksichtigt, dass die spektrale Begrenzung der Oszillationen von 1 meV nicht durch ein instantanes Ausbleichen beschrieben werden kann, sondern dass die Abnahme der Polarisation \mathbf{P} mit einer Abfallzeit von ungefähr 3 ps erfolgt.

Die Modellierung erfolgt mit einem Dipolmoment, dessen zeitliche Entwicklung nach der Wechselwirkung mit dem Anregeimpuls zum Zeitpunkt t_{pu} unter Vernachlässigung der endlichen Impulsdauer über eine Differentialgleichung erster Ordnung gegeben ist:

$$\partial_t \mu_{01}(t) = - \left(\Theta(t - t_{pu}) \mu' e^{-(t - t_{pu})/\tau_\mu} \right) \mu_{01}(t) \quad (6.23)$$

mit $\mu_{01}(0) = \mu_{01}^0$. Die Differentialgleichung wurde so gewählt, dass die Reflektivitätsspektren für $\Delta t < 0$ mit den Spektren von $\Delta R/R_0$ des in Abs. 6.3.4 dargestellten Modells für ein anregungsinduziertes Dephasieren übereinstimmen².

Ladungsträgerrelaxation und ein anregungsinduziertes Dephasieren werden zunächst nicht

²Die Verwendung ähnlich abfallender Dipolmomente, z. B. ein exponentieller Zerfallsansatz führen zu qualitativ gleichen Ergebnissen.

berücksichtigt. Abb. 6.13 (a) zeigt die aus diesem Ansatz resultierende Dämpfung des Dipolmoments. Das Dipolmoment ist zunächst konstant. Durch Absorption des Anregimpuls fällt das Dipolmoment mit einer Zeitkonstanten $\tau_\mu = 1/\mu' \simeq 3$ ps ab, bis es nach $t - t_{Pu} \simeq 3T_\mu = 9$ ps einen Minimalwert annimmt.

Betrachtet man zunächst die Blochgleichungen (Gln. 6.22), so ändert die beschriebene Abnahme des Dipolmoments für negative Verzögerungszeiten die mikroskopische Polarisation p_{01} nicht. Zu positiven Verzögerungszeiten führt die Abnahme des Dipolmoments allerdings zu einer stark verminderten mikroskopischen Polarisation p_{01} .

Für negative Verzögerungszeiten wird jedoch eine direkte Auswirkungen auf die makroskopische Polarisation P erwartet. Diese setzt sich aus der Dynamik des Dipolmoments und der SBE zusammen: $P(t) \propto \text{Im}(\mu^* p_{01})$.

Abb. 6.13 (b) zeigt das aus diesem Modell errechnete Spektrum der Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Verzögerungszeit. Wie erwartet treten für negative Verzögerungszeiten spektrale Oszillationen neben der Resonanz auf. Diese sind symmetrisch zu der Resonanzenergie und besitzen eine energetische Beschränkung, die durch die Rate der Abnahme des Dipolmoments (μ') bestimmt ist. Für positive Verzögerungszeiten ist das Signal lorentzförmig.

Bei spektraler Mittelung verschwinden die Reflektivitätsänderungen zu negativen Verzögerungszeiten vollständig. Die Signale zu positiven Verzögerungszeiten bleiben jedoch erhalten.

Von großem Interesse ist die Dynamik der Reflektivitätsänderung bei Detektion auf der Resonanzenergie. Abb. 6.13 (c) zeigt dies für Verzögerungszeiten in einem Bereich von -10 bis +10 ps. Neben dem exponentiellen Abfall für negative Verzögerungszeiten wird zu positiven Verzögerungszeiten ein zusätzlicher Anstieg der Reflektivitätsänderung errechnet. Der Anstieg verläuft näherungsweise mit: $\Delta R(\Delta t > 0) \propto 1 - \exp(-\mu' \Delta t)$.

Das Maximum der Reflektivitätsänderung wird stets bei positiven Verzögerungszeiten gefunden. Es wird bei einer Verzögerungszeit von ungefähr $\Delta t \gtrsim 3/\mu' = 9$ ps erwartet. Ausschließlich für ein instantanes Ausbleichen ($T_\mu \rightarrow 0$) ist $\Delta R/R$ bei $\Delta t = 0$ maximal.

Für größere Verzögerungszeiten ist die Reflektivitätsänderung konstant und besitzt einen Maximalwert, der bei einem vollständigen Ausbleichen der maximal möglichen Reflektivitätsänderung entspricht.

Die Berücksichtigung der Ladungsträgerrelaxation in einzelne Quantenpunkte führt ebenfalls nicht zu einer Verminderung der Reflektivitätsänderung für $\Delta t > 0$. Es wird im Gegensatz dazu für ein nicht vollständig ausgebleichtes Dipolmoment eine zusätzliche Erhöhung des $\Delta R/R$ -Signals erwartet (vgl. Abs. 3.6). Die Berücksichtigung der Ladungsträgerrelaxation in Verbindung mit der Rekombinationsdynamik kann jedoch einen einfach exponentiellen Abfall des Signals erklären.

Prinzipiell ist auch in diesem Modell für $\Delta t > 0$ die Detektion einer biexponentiell abfallenden Signalamplitude möglich. Allerdings muß dann das Dipolmoment instantan durch die Wechselwirkung mit dem Anregimpuls ausgebleicht werden. Im weiteren Zeitverlauf müsste das Dipolmoment wieder zunehmen. Zusammen mit einer Ladungsträgerbesetzung und -rekombination der Quantenpunkte ergäbe sich die Möglichkeit, ein biexponentielles Signal zu detektieren.

Es zeigt sich folglich, dass die Forderung der Beobachtung beider Signaturen des $\Delta R/R_0$ -

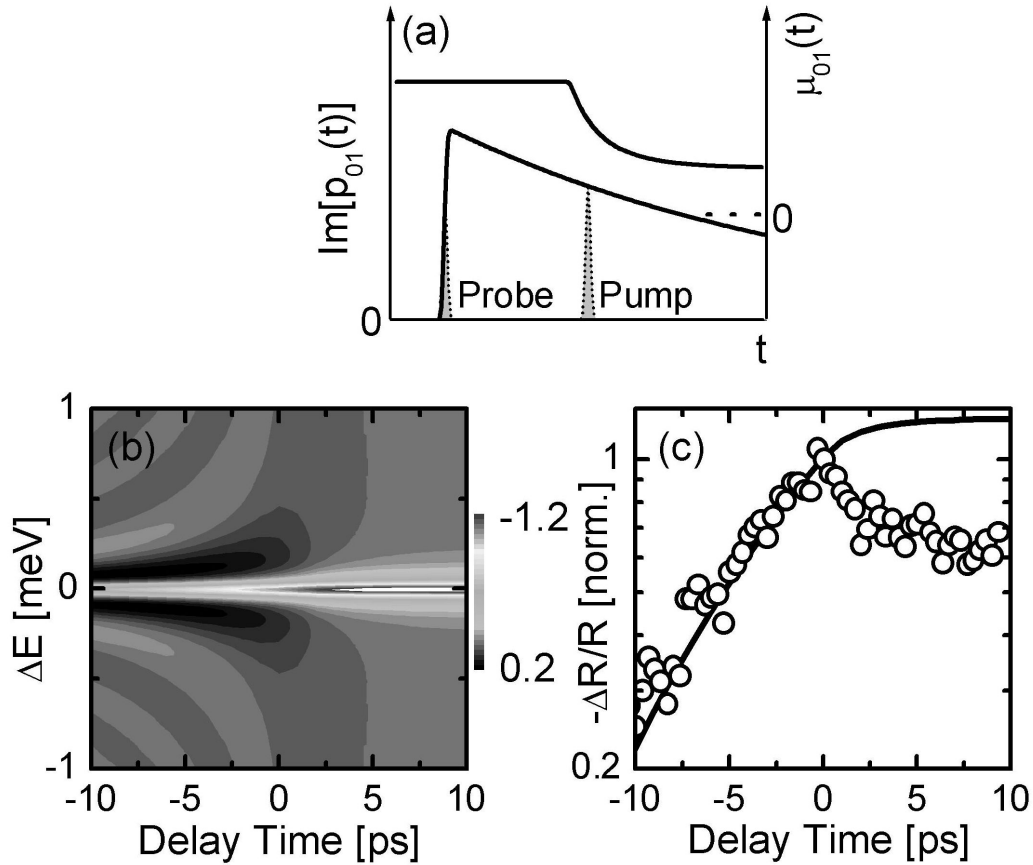


Abbildung 6.13: Modellbetrachtung für Anregeimpulsinduzierte Dämpfung des Dipolmoments. (a) Dynamik für die zeitliche Entwicklung der mikroskopischen Polarisation $p_{01}(t)$ und des Dipolmoments $\mu_{01}(t)$ nach Absorption des Anregeimpulses. (b) Die Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Detektion und der Verzögerungszeit. Spektral symmetrische Oszillationen für $\Delta t < 0$ und eine lorentzförmige Resonanzlinie für $\Delta t > 0$ wird detektiert. (c) Die zeitliche Entwicklung der Reflektivitätsänderung bei Detektion auf der Resonanzenergie fällt für $\Delta t < 0$ exponentiell ab. Für $\Delta t > 0$ wird im Gegensatz zu den experimentellen Beobachtungen (o) ein zusätzlicher Anstieg gefunden.

Spektrums zu positiven und negativen Verzögerungszeiten nicht gleichzeitig in diesem Modell erfüllbar ist. Daher kann dieses Modell die experimentell beobachteten Reflektivitätsänderungen nicht korrekt beschreiben. Eine Abnahme des Dipolmoments kann folglich als dominanter Mechanismus ausgeschlossen werden.

Anregungsinduziertes Dephasieren

Die Ursache für das Auftreten spektraler Oszillationen im Experiment ist ein anregungsinduziertes Dephasieren (EID). Ein anregungsinduziertes Dephasieren wurde an Quantenfilmen bereits mehrfach experimentell detektiert und theoretisch beschrieben [Koc88, Wan94, Wag99, Kai01]. Verursacht wird ein anregungsinduziertes Dephasieren durch Coulomb-Streuung zwischen der Quantenpunktpolarisation und der anfänglichen Nichtgleichgewichts-Ladungsträgerverteilung in Kontinuumszuständen des Quantenfilms [Cun96].

Ist das Spektrum von $\Delta R/R_0$ im Wesentlichen durch den Imaginärteil der Polarisations ($\tilde{P}(\omega)$) bestimmt, führt das EID wie in Abs. 3.6 bereits dargestellt zum Auftreten spektral symmetrischer Oszillationen, ohne dass die Position der Resonanz verschoben wird.

Die theoretische Beschreibung eines anregungsinduzierten Dephasierens kann im Formalismus der Halbleiterblochgleichungen unter Berücksichtigung der Ladungsträger-Boltzmannstreurterme gegeben werden [Hau98, Lin88a, Bin92]. Dabei schliessen die Ladungsträger-Boltzmannstreurterme sowohl Ladungsträger-Ladungsträger-, als auch Polarisations-Polarisations- und Ladungsträger-Polarisationsstreuung ein. Dabei führt vorwiegend Ladungsträger-Polarisationsstreuung zu einer Erhöhung der Dephasierung [Lin88a].

Die Ladungsträger-Polarisationsstreurate besitzt eine starke Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte, so dass höhere Anregungsintensitäten zu einer Erhöhung der Dephasierungsrate führen sollten (vgl. auch Abs. 3.6). Eine zeitabhängige Abnahme der Besetzungsdichte durch z. B. Ladungsträgerrelaxation vermindert die Dephasierungsrate, so dass ein biexponentieller Abfall der Reflektivitätsänderung möglich ist.

Modellbetrachtung für ein anregungsinduziertes Dephasieren

Zur Bestätigung, dass ein anregungsinduziertes Dephasieren zu der beobachteten Signaldynamik führt wird eine Modellbetrachtung durchgeführt.

Der Modellbetrachtung liegt zugrunde, dass Ladungsträger in kontinuierlichen Zuständen zu einer erhöhten Dephasierung der Quantenpunktpolarisation führen [Lin92]. In erster Näherung kann die Streurrate $\gamma(t)$ für geringe Besetzungsdichten über die Besetzungsdichte der Umgebung $f^{(U)}(t)$ angegeben werden (vgl. Gln. 6.22):

$$\frac{1}{T_{deph}(f^{(U)})} = \gamma_{deph}(f^{(U)}) \simeq \gamma_0 + \gamma_{EID} f^{(U)}(t). \quad (6.24)$$

Die Ladungsträgerrelaxation wird durch einen phänomenologischen exponentiellen Zerfallsansatz beschrieben:

$$f^{(U)}(t) \propto \Theta(t) e^{-t/T_R}. \quad (6.25)$$

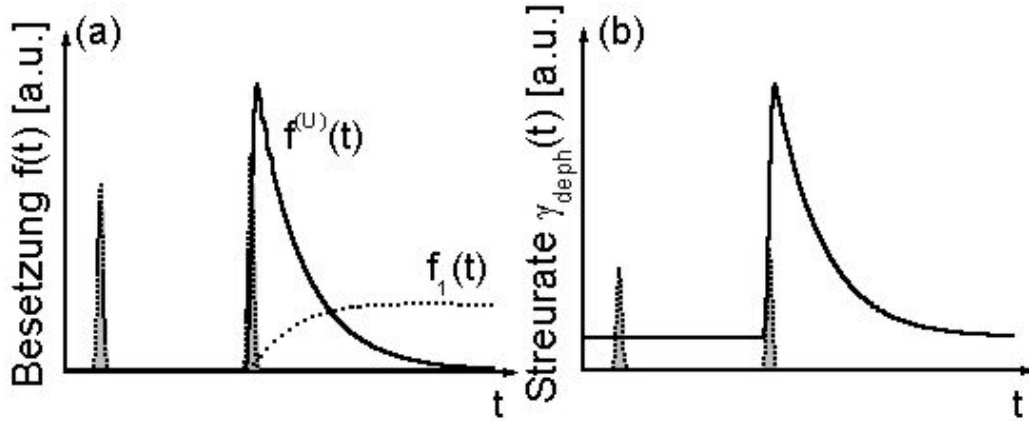


Abbildung 6.14: (a) Dynamik der Besetzungsdichte des angeregten delokalisierten Zustands ($f^{(U)}(t)$) und lokalisierten Zustands ($f_1(t)$) nach Absorption des Anregeimpulses. (b) Zeitentwicklung der Polarisationsdephasierungsrate $\gamma_{deph}(t)$. Nach Wechselwirkung mit dem Anregeimpuls nimmt die Dephasierungsrate γ instantan stark zu. Ladungsträgerrelaxation aus Kontinuumszuständen in unterschiedliche Quantenpunktzustände führt zu einer allmählichen Rückkehr zur freien Dephasierungsrate γ_0 .

und führt zu einer Besetzung des Exzitonengrundzustands eines Quantenpunkts:

$$f_1(t) = F_R (1 - \Theta(t)e^{-t/T_R}). \quad (6.26)$$

Dabei beschreibt F_R den Anteil der Besetzung, der in den betrachteten Quantenpunkt relaxiert. Als weitere Annahme werden Wechselwirkungen zwischen unterschiedlichen Quantenpunkten vernachlässigt. Weder Ladungsträgerkopplung noch Polarisationskopplung wird berücksichtigt. Die Ladungsträgerrelaxation findet ausschließlich aus dem Kontinuum in einen Quantenpunktzustand statt und nicht zwischen benachbarten Quantenpunktzuständen. Ladungsträger im Exzitonengrundzustand eines Quantenpunkts rekombinieren mit einer Rekombinationsrate $\Gamma_l = 1/T_{ll}$.

Abb. 6.14 (a) zeigt die Besetzungsdynamik der Umgebung und des lokalisierten Exzitonengrundzustands nach Absorption des Anregeimpulses. Infolge der Absorption werden Ladungsträger in der Umgebung generiert. Die Besetzungsdichte nimmt im folgenden Zeitverlauf exponentiell mit T_R ab. Zeitgleich baut sich langsam eine Ladungsträgerbesetzung im Exzitonengrundzustand des Quantenpunkts auf.

Die Dephasierungsrate γ_{deph} zeigt einen Verlauf, der der Ladungsträgerbesetzung in der Umgebung gleicht. Nach Absorption des Anregeimpulses und der Besetzung von Umgebungszuständen erhöht sich γ_{deph} drastisch auf $\gamma_{deph} \simeq \gamma_0 + f^{(U)}\gamma_{EID}$. Sie fällt dann mit Abnahme der Besetzung des Kontinuums ab, bis sie nach ungefähr $3T_R$ wieder die freie Dephasierungsrate γ_0 erreicht.

Die Erhöhung der Dephasierungsrate stört den freien Induktionszerfall der abtastimpulsinduzierten mikroskopischen Polarisation p_{01} (Abb. 6.15 (a)). Nach Absorption des Anregeimpulses wird der Polarisationszerfall stark beschleunigt. Dieser anregeimpulsinduzierte Zerfall ist nahezu exponentiell. Die Zerfallsrate ist durch γ_{EID} bestimmt.

Abb. 6.15 (b) zeigt die aus diesem Modell errechnete Reflexionsänderung für $T_R = 3$ ps, $T_{EID} = 3$ ps, $T_2 = 15$ ps der betrachteten Quantenpunktresonanz. Sie gibt qualitativ den

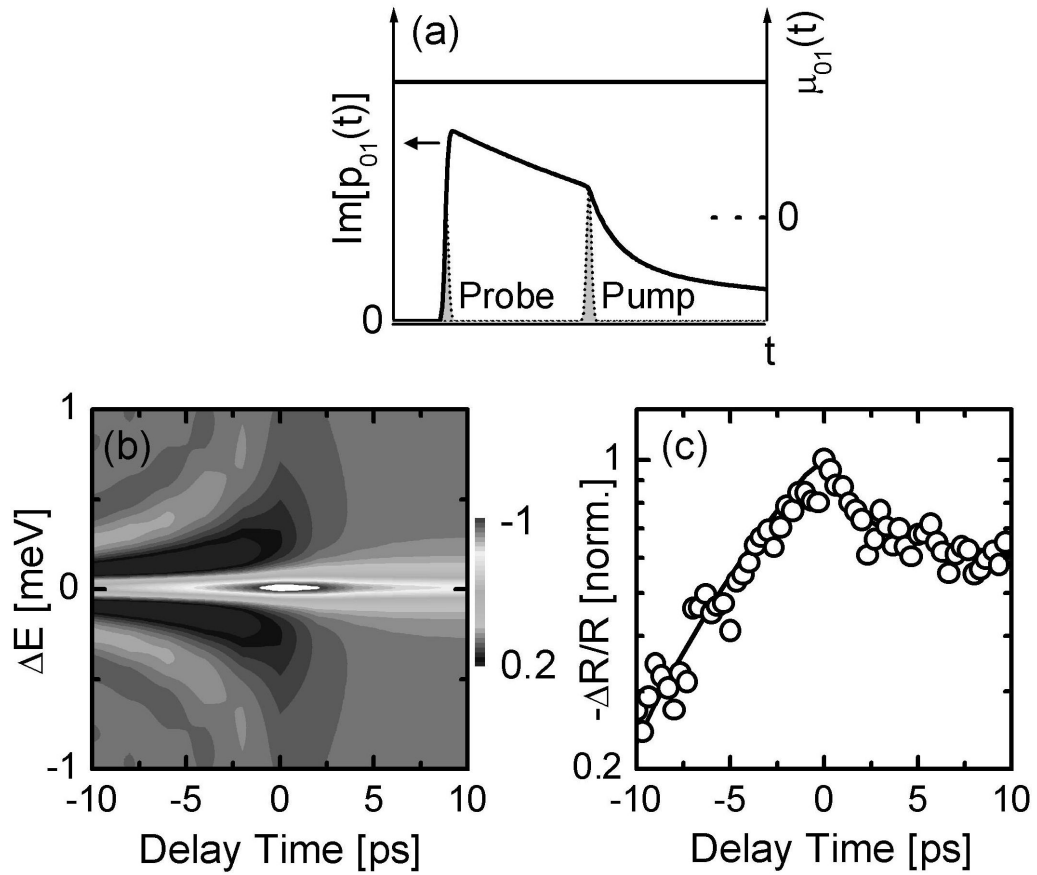


Abbildung 6.15: Simulation der Reflektivitätsänderung unter Berücksichtigung eines anregungsinduzierten Dephasierens. (a) Das Dipolmoment $\mu_{01}(t)$ bleibt zeitlich konstant. Nach Wechselwirkung mit dem Anregeimpuls nimmt die mikroskopische Polarisation p_{01} aufgrund der Dephasierungsrate γ_{deph} verstärkt ab. (b) Die Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Detektionsenergie und der Verzögerungszeit Δt zeigt spektral symmetrisch Oszillationen für $\Delta t < 0$ sowie eine lorentzförmige Resonanzlinie für $\Delta t > 0$. (c) Die zeitliche Entwicklung von $\Delta R/R_0$ bei Detektion auf der Resonanzenergie zeigt einen exponentiellen Abfall für $\Delta t < 0$ sowie einen biexponentiellen Abfall für $\Delta t > 0$.

experimentellen Verlauf wieder (Abb. 6.6). Deutlich sichtbar ist das Auftreten spektral symmetrischer Oszillationen zu negativen Verzögerungszeiten $\Delta t < 0$. Diese sind energetisch begrenzt. Die maximale Reflektivitätsänderung wird im Gegensatz zu einer Abnahme des Dipolmoments für $\Delta = 0$ beobachtet (vgl. Abs. 6.3.4). Folglich erfährt P_{QD} für $\Delta t = 0$ die grösste Änderung. Zu positiven Verzögerungszeiten $\Delta t > 0$ wird ein biexponentieller Abfall errechnet. Zu großen positiven Zeiten $\Delta t \gg 0$ wird ein lorentzförmige Reflexionsspektrum errechnet.

Während die Absorption des Anregimpulses zu negativen Verzögerungszeiten zu einer erhöhten Zerfallsrate der Quantenpunktpolarisation führt und dadurch den freien Induktionszerfall stört, erzeugt der Abtastimpuls für $\Delta t > 0$ eine Polarisation in dem durch den Anregimpuls „vorpräparierten“ System. Die Absorption wird durch die Besetzung des Quantenpunktzustands erniedrigt. Gleichzeitig ist die Dephasierungsrate aufgrund der Ladungsträgerbesetzung der Umgebungszustände vermindert. Beide Effekte führen zu einer Verminderung der Polarisation $P_{QD}(\omega, \Delta t)$ und so zu einer Beobachtung einer nichtverschwindenden Reflektivitätsänderung. Dabei wird eine maximale Störung der Polarisation P_{QD} und somit eine maximale Reflektivitätsänderung bei $\Delta t = 0$ erreicht. Für $\Delta t < 0$ dephasiert die Polarisation zunächst mit der Zerfallsrate des freien Polarisationszerfalls bevor die Wechselwirkung des Anregimpuls mit der Probe zu einer erhöhten Dephasierungsrate führt, woraus sich die beobachtete Abnahme im $\Delta R/R-0$ -Signal erklärt. Zu positiven Verzögerungszeiten führt die Ladungsträgerrelaxation nach obiger Gleichung zu einer Abnahme der Dephasierungsrate. Dadurch vermindert sich die Störung der Polarisation wieder. Die Erhöhung der Besetzung des Quantenpunktzustands wirkt dieser Verminderung entgegen, kann sie jedoch nicht ausgleichen oder übertreffen, so dass die maximale Reflektivitätsänderung für $\Delta t = 0$ errechnet wird.

Die Betrachtung der simulierten Dynamik bei Detektion auf der Resonanzenergie macht die quantitative Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment deutlich (Abb. 6.15 (c)). Durch die Simulation kann der Zeitverlauf des $\Delta R/R$ -Signals sehr präzise wiedergegeben werden.

Es zeigt sich folglich, dass mit diesem einfachen Modell basierend auf einem anregungsinduzierten Dephasieren die experimentell beobachtete Signaldynamik hervorragend wiedergegeben wird.

6.3.5 Vergleich mit dem Experiment - Bestimmung der Zeitkonstanten

Die vorigen Simulationen erhärten stark die Annahme, dass EID der dominante Mechanismus für die beobachteten nichtverschwindenden Signale, sowie die spektralen Oszillationen ist. Zur Bestimmung der unterschiedlichen Zeitkonstanten wird das vorher beschriebene Modell global mit der experimentell bestimmten Dynamik verglichen. Eine Impulsdauer von 300 fs und eine Monochromatorauflösung von 60 μeV wurden mitberücksichtigt. Abb. 6.16 zeigt die globale Anpassung des Modells an die Daten. Sie zeigen die sehr gute Übereinstimmung für eine Polarisationsdephasierungszeit $T_2 = 15$ ps, eine anregungsinduzierte Dephasierungszeit von $T_{EID} = 3$ ps und eine Relaxationszeit von $T_R = 3$ ps. Die Bestimmung der anregungsinduzierten Dephasierung kann dabei aufgrund der Sensitivität der Bandbreite der spektralen Oszillationen auf 1 ps genau bestimmt werden: $T_{EID} = (3 \pm 1)$ ps. Ebenso beträgt der maximale Fehler der Relaxationszeit T_R : 1 ps: $T_R = (3 \pm 1)$ ps.

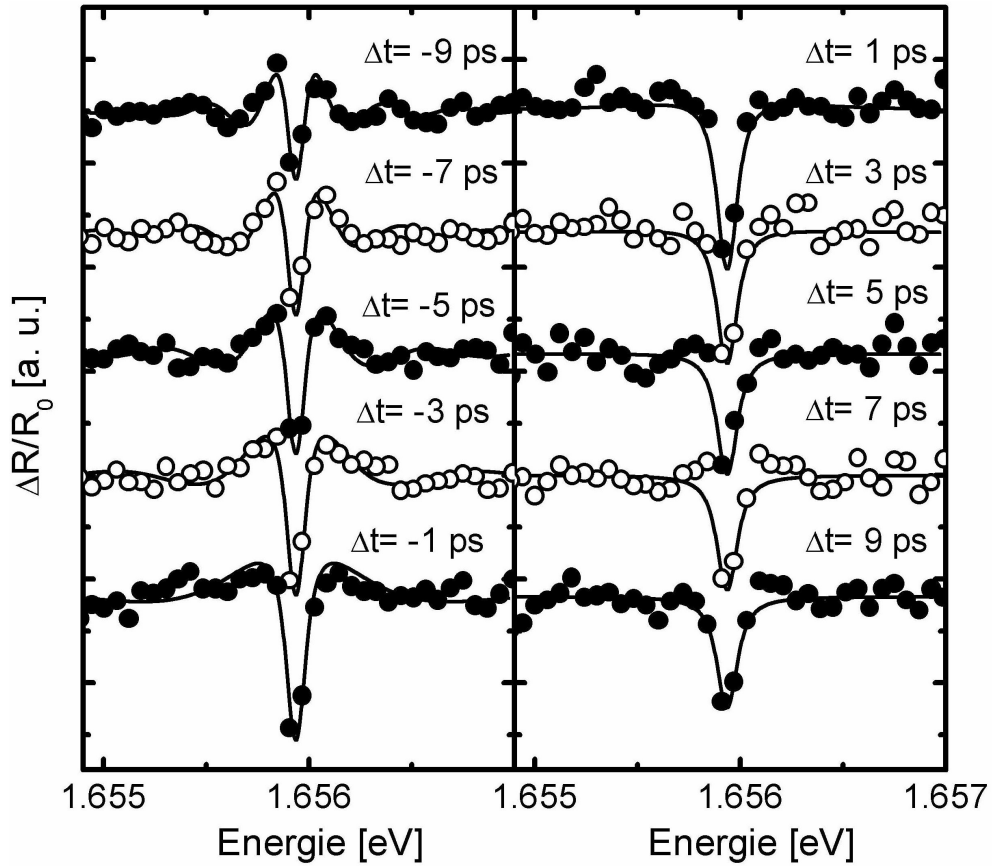


Abbildung 6.16: Der Vergleich der experimentell gewonnenen Daten (\circ, \bullet) mit dem in Abs. 6.3.4 beschriebenen Modell (—) für eine Dephasierungszeit $T_2 = 15$ ps, einer Relaxationszeit $T_R = 2$ ps und einer erhöhten Streurrate von $\gamma_{EID} = 1/3$ ps $^{-1}$ zeigt eine hervorragende Übereinstimmung.

Die Dephasierungszeit ist vorwiegend durch die Monochromatorauflösung von $60 \mu\text{eV}$ bestimmt. Sie limitiert die detektierbare Dephasierungszeit. Darüber hinaus sind die scheinbar schnelleren Abfälle der Transienten auf der Resonanzenergie mit $T_n = 8$ ps eine Folge der spektralen Detektion. Neben der auflösungsbedingten Verminderung der Dephasierungszeit ist die Energie maximaler Reflektivitätsänderung nicht unbedingt auf ein Pixel der CCD-Kamera zentriert. Es wird folglich auf der Flanke des lorentzförmigen Reflexionsspektrums detektiert. Der beobachtete exponentielle Abfall besitzt — je nach Position des Absorptionsmaximum auf dem Pixel — eine Zeitkonstante T_n , die zwischen der auflösungsbegrenzten Dephasierungszeit T_2 und $T_2/2$ liegt. Die beobachtete Zeitkonstante von 8 ps entspricht nahezu $T_2/2$.

Durch die globale Anpassung der Simulationen an die experimentell bestimmten Daten kann eine Untergrenze für die Polarisationsdephasierung gegeben werden. Berücksichtigt man die endliche Monochromatorauflösung von $60 \mu\text{eV}$, beträgt diese Untergrenze 23 ps.

Eine Obergrenze der Dephasierungszeit ist durch ausschliesslich strahlende Dephasierung gegeben. Bei einer maximalen Lebensdauer von 165 ps beträgt sie $T_2 \leq 2T_1 = 330$ ps. Spielt der Einfluss der reinen Dephasierung eine untergeordnete Rolle, wird eine Dephasierungszeit in dieser Größenordnung erwartet. Die Detektion erfordert dann allerdings eine spektrale Auflösung von wenigen μeV .

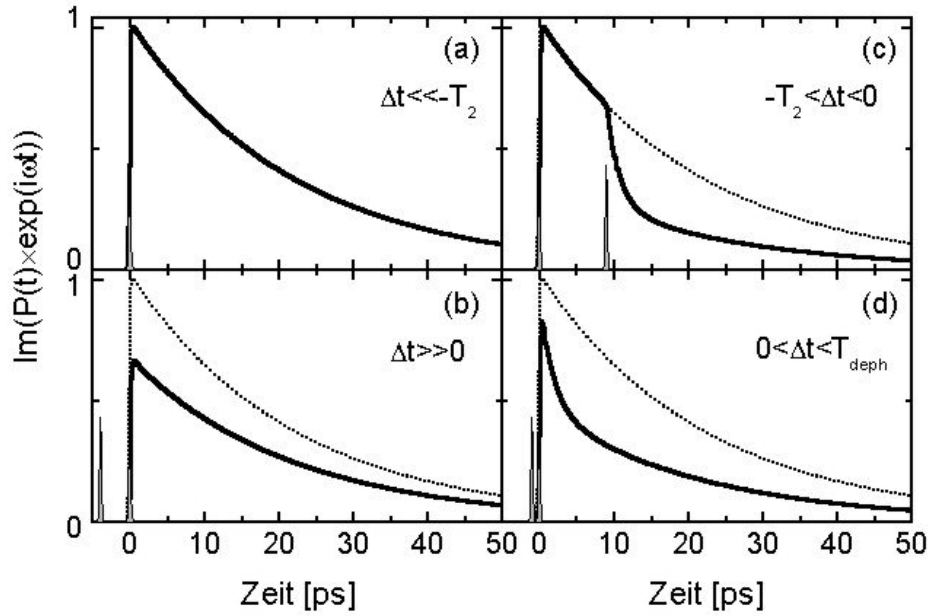


Abbildung 6.17: Rekonstruktion der Polarisationsdynamik eines einzelnen Quantenpunktübergangs nach optischer Anregung. (a) ungestörter Polarisationszerfall. (b) Für $\Delta t \gg 0$ führt die Wechselwirkung mit dem Anregimpuls zu einer besetzungsinduzierten Verminderung der Polarisationsamplitude, nicht jedoch zu einer erhöhten Dephasierung. (c) Für $\Delta t < 0$ wird eine Abnahme der Dephasierungszeit T_{deph} beobachtet. (d) Ist $0 < \Delta t < T_{deph}$ wird eine besetzungsinduzierte Verminderung der Polarisation und eine erhöhte Dephasierung gefunden. Zum Vergleich: \cdots ungestörter Polarisationszerfall.

Bislang konnten jedoch experimentell an einzelnen *Interface Quantenpunkten* keine derart hohen Dephasierungszeiten nachgewiesen werden.

6.3.6 Polarisationsdynamik

Es ist folglich möglich die Dynamik der Polarisation $P(t)$ in einem einzelnen Quantenpunkt nahezu vollständig zu rekonstruieren. Vier unterschiedliche Zeitbereiche sind dabei zu beachten. In Abb. 6.17 ist die zeitliche Entwicklung des Imaginärteils von $P(t)$ für die unterschiedlichen Bereiche dargestellt.

- Bei Abwesenheit des Anregimpuls oder für grosse negative Verzögerungszeiten ($\Delta t \ll -T_2$) treibt der resonante Abtastimpuls eine Polarisation $P(t)$ des Quantenpunktübergangs, die dann im weiteren Zeitverlauf mit der ungestörten Dephasierungszeit $T_2 \geq 23$ ps exponentiell abfällt (Abb. 6.17 (a)).
- Nach Absorption des Anregimpulses wird für späte positive Verzögerungszeiten ($\Delta t \gg 0$) die Amplitude der Polarisation aufgrund einer Besetzungsdichte des exzitonischen Grundzustands $\Delta f = f_0 - f_1$ vermindert. Die Dephasierungszeit wird jedoch nicht beeinflusst. Δf und damit die Verminderung Amplitude der Polarisation ist dabei für Anregimpulsleistungen $0 < P_{exc} < 200$ nW linear: $\Delta f \propto P_{exc}$. Die detektierte

Reflektivitätsänderung beträgt bei einer Anregeimpulsleistung von 100 nW ungefähr 10% der maximal beobachteten Reflektivitätsänderung, so dass die Besetzungsdichte zu ungefähr 0.1 Exzitonen abgeschätzt werden kann.

- Für negative Verzögerungszeiten treibt der Abtastimpuls die Polarisierung, die zunächst mit der ungestörten Dephasierungszeit T_2 exponentiell abnimmt. Infolge der Wechselwirkung mit dem Anregeimpuls vermindert sich die Dephasierungszeit auf $T_{deph} \simeq 3$ ps. Die Ursache hierfür liegt in einem anregungsinduzierten Dephasieren. T_{EID} besitzt dabei eine starke Anregeimpulsabhängigkeit. In guter Näherung gilt: $1/T_{deph} = (1/T_2 + 1/T_{EID} \cdot f^{(U)})$. Mit Abnahme der Ladungsträgerbesetzung des Kontinuums steigt die Dephasierungszeit wieder an.
- Im Bereich $0 < \Delta t < 2$ ps spielen beide oben beschriebenen Effekte eine Rolle. Die Polarisationsamplitude wird durch eine nichtverschwindende Ladungsträgerbesetzung des Quantenpunktzustands vermindert. Gleichzeitig ist die Dephasierungszeit T_{deph} kleiner als die ungestörte Dephasierungszeit T_2 , nähert sich allerdings im weiteren Zeitverlauf der ungestörten Dephasierungszeit T_2 an.

6.3.7 Anregungsinduziertes Dephasieren - Halbleiter - Blochgleichungen

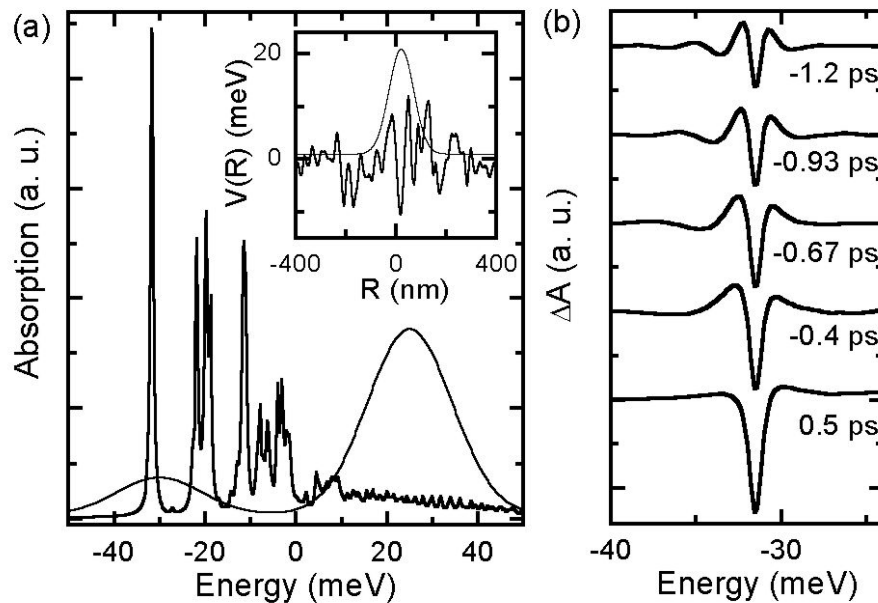


Abbildung 6.18: (a) Theoretisch berechnetes lineares Absorptionsspektrum eines Quantenpunktensembles bei räumlicher Auflösung von 100 nm. Die Berechnung erfolgt auf der Basis der Halbleiter-Bloch-Gleichungen unter Annahme eines Gauß-Korrelierten eindimensionalen Unordnungspotentials (inset). (···) Spektrum des Anrege- (zentriert auf 30 meV) und Abtastimpuls (zentriert auf -30 meV). (b) Nichtlineares Absorptionsspektrum der niederenergetischen Resonanz von (a) für unterschiedliche Verzögerungszeiten Δt . Für negative Verzögerungszeiten werden symmetrische Oszillationen auf dem Spektrum sichtbar. Sie zeigen den gestörten freien Induktionszerfall der Resonanz.

Eine theoretische Bestätigung, dass ein anregungsinduziertes Dephasieren zu einer derartigen spektral aufgelösten Signaldynamik führt, bietet die Untersuchung der Auswirkungen des anregungsinduzierten Dephasierens auf die nichtlinearen Absorptionseigenschaften einzelner lokalisierter Exzitonen auf Basis der Halbleiter-Blochgleichungen. Hierbei findet Unordnung und Coulomb-Wechselwirkung Berücksichtigung. Die Simulationen wurden von M. Glanemann durchgeführt.

Aus einem zufällig erzeugten 1-D Gauß-korrelierten Unordnungspotential mit einer Lokalisierungslänge $\xi=10$ nm und eine Potentialamplitude von 5 meV wurde zunächst das lineare Absorptionsspektrum berechnet (Abb. 6.18 (a)). Unter Berücksichtigung einer optischen Auflösung von 100 nm werden am niederenergetischen Rand des Spektrum einzelne scharfe Resonanzen lokalisierter Exzitonen sichtbar. Zu höheren Energien wird die Wechselwirkung zwischen mehr oder weniger lokalisierten Zuständen deutlich, die dann am hochenergetischen Rand in die Absorption des Quantenfilmkontinuums mündet.

Das nichtlineare Absorptionsspektrum $\Delta A \propto \text{Im}(\tilde{E}_T^*(\omega)\tilde{P}(\omega))$, welches auf den Imaginärteil der Quantenpunktpolarisation sensitiv ist ($\Delta A \propto \text{Im}(\tilde{P}(\omega))$), wurde unter Berücksichtigung des EID und Ladungsträgerstreuung errechnet. Dabei wurde für die anregungsinduzierte Dephasierung ein phänomenologischer anregungsintensitätsabhängiger Zerfallsansatz angenommen:

$$\gamma(t) = \gamma_0 + \gamma_{EID} \int_{-\infty}^t E_{ges}(t') dt'. \quad (6.27)$$

Zur Simulation des Anrege-Abtast-Experiments wird der Anregeimpuls nichtresonant mit einer Überschussenergie von ungefähr 30 meV zentral auf die Kontinuumsabsorption gewählt. Der Abtastimpuls wird auf die niederenergetische Resonanz des linearen Absorptionsspektrums zentriert.

Zur Reduktion der Rechenzeit wurde die Zeitachse skaliert. Demzufolge wurden skalierte Dephasierungen $\gamma_0 = 2 \text{ ps}^{-1}$ und $\gamma_{EID} = 0.4 \text{ ps}^{-1}$ angenommen und die Halbleiterblochgleichungen über einen Zeitbereich von 5 ps integriert.

In Abb. 6.18(b) ist die nichtlineare Absorptionsänderung des abgefragten Quantenpunktzustands für unterschiedliche Verzögerungszeiten dargestellt. Diese zeigen eine gute qualitative Übereinstimmung zu den experimentell beobachteten Reflektivitätsänderungen. Für positive Verzögerungszeiten wird eine näherungsweise lorentzförmige Absorptionsänderung detektiert. Zu negativen Verzögerungszeiten werden außerhalb der Resonanz symmetrische spektrale Oszillationen deutlich. Deren spektrale Ausdehnung nimmt mit Abnahme der Verzögerungszeit ab. Deutlich wird auch die spektrale Begrenzung der Oszillation, wie sie für ein anregungsinduziertes Dephasieren erwartet wird.

6.4 Ladungsträgerdynamik

Die Spektren von $\Delta R/R_0$ zeigen zu kurzen positiven Verzögerungszeiten einen schnellen exponentiellen Abfall. In den vorigen Abschnitten wurde dies über ein Anregungsinduziertes Dephasieren zusammen mit Ladungsträgerrelaxation erklärt. Dabei führt die Ladungsträgerrelaxation zu einer Besetzung von Quantenpunktzuständen und gleichzeitig zu einer Abnahme der Besetzung von Kontinuumszuständen. Nach Gln. 3.79 vermindert sich folglich die Wechselwirkung zwischen Ladungsträger in Kontinuumszuständen und der Quantenpunktresonanz. Die Abnahme der Wechselwirkung findet dabei auf einer 3 ps-Zeitskala statt.

Nach optischer Anregung mit dem Anregeimpuls ändern sich folglich die elektronischen Eigenschaften der Kontinuumszustände auf dieser Zeitskala. Die wahrscheinliche Ursache hierfür ist Ladungsträgerrelaxation. Dies ist insbesondere dadurch begründet, dass für $\Delta t \gg 0$ direkt die Ladungsträgerbesetzung einzelner Quantenpunkte detektiert wird. Folglich ist eine Ladungsträgerrelaxation in unterschiedliche Quantenpunkte vorausgegangen. Das spektral integrierte Signal der Reflektivitätsänderung zeigt einen nahezu instantanen Anstieg, so dass von einer schnellen Ladungsträgerrelaxation ausgegangen werden muss. Auch auf dem Signal der Reflektivitätsänderung der 19 ML dicken Schicht des Quantenfilms **E** zeigt ebenfalls die Signatur einer Ladungsträgerbesetzung, die auf einer Zeitskala von ungefähr 2 ps abnimmt.

Als zweite Möglichkeit ist Ladungsträgertransport zu berücksichtigen. Gerade bei räumlich hochaufgelösten Experimenten führt Ladungsträgertransport zu einer Änderung der räumlichen Besetzungsdichte. Dies kann ebenfalls zu einer Verminderung der Besetzungsdichte von Umgebungszuständen und somit zu einer Abnahme der Wechselwirkung zwischen diesen und der Quantenpunktresonanz führen.

In den folgenden Abschnitten werden der mögliche Einfluss von Ladungsträgertransport und Ladungsträgerstreuung, die für die Ladungsträgerrelaxation verantwortlich ist genauer diskutiert.

6.4.1 Ladungsträgertransport

Der *Anregungs-/Aufsammel*-Modus besitzt eine Auflösung von ungefähr 200 nm. Durch die hohe räumliche Auflösung wird eine räumlich sehr inhomogene Ladungsträgerverteilung erzeugt. Der Ladungsträgertransport nach optischer Anregung führt zu einer räumlichen Umverteilung der Ladungsträger, die eine Verbreiterung der stark lokalisierten Verteilung zur Folge hat. Dadurch wird die Besetzungsdichte reduziert.

Mehrere Transportmechanismen sind zu berücksichtigen:

Ballistischer Transport

Bei der optischen Anregung des Halbleiters oberhalb der Bandkante werden Elektronen-Loch-Paare erzeugt. Da der Photonen-Impuls vernachlässigbar ist, besitzen Elektronen und Löcher einen entgegengesetzten Impuls gleicher Größe. Bei Abwesenheit von Stoßprozessen bewegen sich Elektronen und Löcher gleichförmig in entgegengesetzter Richtung mit der durch die Überschussenergie des eingesetzten Anregeimpulses festgelegten Geschwindigkeit $v_{e,h}$ aus der Anregefläche.

Die ballistische Geschwindigkeit $v_{e,h}$ lässt sich direkt über die Überschussenergie aus der Energie- und Impulserhaltung bestimmen. Dabei ist:

$$v_a = \frac{p_a}{m_a} = \frac{\sqrt{\frac{2E_{exc}}{\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}}}}{m_a}, \quad a = e, h \quad (6.28)$$

Für die Anregung mit der in den Experimenten eingesetzten Überschussenergie von 27 meV betragen die typischen ballistische Geschwindigkeiten von $v_e \simeq 340$ nm/ps und $v_h \simeq 130$ nm/ps.

Experimentell wurde nahezu ballistischer Transport bereits in dünnen GaAs-Quantenfilmen

bei $T=20$ K und Anregung mit Überschussenergien $\gg 30$ meV beobachtet [Het01b]. Die resultierende quasi-ballistische Geschwindigkeit von 100 nm/ps liegt dabei bedeutend unterhalb der hier abgeschätzten.

Ballistischer Transport ist nach fs-Anregung auf das kohärente Regime beschränkt. In diesem Regime bewahren die angeregten Zustände eine feste Phasenbeziehung untereinander und mit dem angeregten elektromagnetischen Feld. Streuprozesse, wie beispielsweise Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung oder die Streuung mit verschiedenen Arten von Phononen (LA, LO,...) zerstören die Kohärenz im angeregten System. Gleichzeitig führen Streuprozesse zu einer Änderung des Impulses der angeregten Ladungsträger.

Die Zerstörung der Phasenkohärenz wurde von Hegarty *et al.* mit Hilfe resonanter Rayleigh-Streuung an dünnen Quantenfilmen untersucht [Heg82, Heg84]. Die dort ermittelte homogene Linienbreite weist eine starke Abhängigkeit von der Überschussenergie E_{exc} auf; sie steigt mit wachsendem E_{exc} stark an. Dementsprechend nimmt die Dephasierungszeit mit wachsender Anregungsenergie stark ab. Im Bandkontinuum liegen typische Dephasierungszeiten im Bereich von 100 fs [Sha01].

Mit einer Dephasierungszeit von 100 fs und einer abgeschätzten ballistischen Geschwindigkeit von $v_e \simeq 340$ nm/ps kann eine maximale Transportlänge L_{ball} für ballistischen Transport von $L_{ball} = v_{e,h}\tau \simeq 34$ nm.

Dies ist bedeutend kleiner als die optische Auflösung von 220 nm. Es werden folglich nahezu keine Ladungsträger durch ballistischen Transport aus dem Anregevolumen transportiert. Deswegen kann der Einfluss von ballistischen Transport auf die durchgeführten fs-Experimente vernachlässigt werden.

Diffusiver Transport:

Nach Zerstörung der Phasenkohärenz ist die Ladungsträger-Verteilungsfunktion nicht-thermisch und kann zunächst nicht durch eine Temperatur charakterisiert werden. Infolge von Streuprozessen findet eine Energieumverteilung statt. So bildet sich innerhalb weniger Pikosekunden eine heiße thermische Verteilung. Streuprozesse führen zu einer zunehmenden Abkühlung und zum Übergang in eine thermische Verteilung.

Die Dynamik des Systems hängt in diesem Bereich sowohl von der räumlichen Verteilung als auch von der Verteilung der Impulse ab. Energetische Relaxation und räumliche Dynamik können in diesem Bereich nicht getrennt voneinander betrachtet werden.

Eine Möglichkeit der Beschreibung eines solchen Systems liegt in der Boltzmann-Gleichung (vgl. z. B. [Hau96]). Sie beschreibt die zeitliche Entwicklung der Verteilungsfunktionen der Elektronen $f_e(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)$ und Löcher $f_h(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)$ im Orts- (\mathbf{r}) und Impulsraum (\mathbf{k}) klassisch. Sie kann unter Vernachlässigung des Magnetfelds für Elektronen im Halbleiter über:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}f_e(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) &= \frac{\partial f_e}{\partial t} + \frac{d\mathbf{r}}{dt} \cdot \nabla_{\mathbf{r}}f_e + \frac{d\hbar\mathbf{k}}{dt} \cdot \nabla_{\hbar\mathbf{k}}f_e \\ &= \frac{\partial f_e}{\partial t} + \frac{\hbar\mathbf{k}}{m_e}\nabla_{\mathbf{r}}f_e - [\nabla_{\mathbf{r}}V(\mathbf{r})] \cdot \nabla_{\hbar\mathbf{k}}f_e = \left. \frac{\partial f_e}{\partial t} \right|_{streu} \end{aligned} \quad (6.29)$$

beschrieben werden. Dabei ist $V(\mathbf{r})$ die potentielle Energie der Elektronen. Für Löcher lässt sich eine äquivalente Gleichung angeben.

Der Streuterm schließt sämtliche Streumechanismen ein. Es müssen sowohl Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung, als auch Streuung mit Phononen (LO, LA) berücksichtigt werden. Diese werden im folgenden Abschnitt diskutiert. Sie führen dazu, dass das System sich

nach einer anfänglichen nicht-thermischen Verteilung mit zunehmender Zeitdauer dem thermischen Gleichgewicht annähert. Sie führen allerdings gleichzeitig zu Änderungen der Impuls- und Ortskoordinaten, so dass eine direkte Lösung der Boltzmann-Gleichung sehr aufwendig bzw. teilweise nur in vereinfachten Geometrien möglich ist.

Nach der Relaxation der Ladungsträgerverteilung in eine thermische Gleichgewichtsverteilung lassen sich die Ladungsträgerströme \mathbf{J}_e (\mathbf{J}_h) durch die Drift-Diffusionsgleichung für Elektronen und Löcher beschreiben:

$$\begin{aligned}\mathbf{J}_e &= -D_e \nabla_r n_e + n_e \mu_e \nabla_r \phi \\ \mathbf{J}_h &= \underbrace{-D_h \nabla_r n_h}_{\text{Diffusionsstrom}} - \underbrace{n_h \mu_h \nabla_r \phi}_{\text{Driftstrom}}\end{aligned}\quad (6.30)$$

Dabei beschreibt D_e (D_h) die Diffusionskonstante und μ_e (μ_h) die Beweglichkeit der Elektronen (Löcher). Der Diffusionsstrom wird durch den Gradienten der Dichte getrieben und diesem immer entgegen wirkt. Der Driftstrom resultiert aus dem Gradienten im elektrischen Potential ϕ , also dem elektrischen Feld. Zusammen mit der Kontinuitätsgleichung

$$\frac{dn_{e,h}}{dt} = -\nabla_r \cdot \mathbf{J}_{e,h} \quad (6.31)$$

kann die Drift-Diffusionsgleichung selbstkonsistent mit Hilfe der Poisson-Gleichung $\Delta_r \phi = e(n_e - n_h)/(\epsilon_0 \epsilon_r)$ gelöst werden.

In vielen Fällen kann die Diffusionskonstante über die Bestimmung der Beweglichkeit μ intensitätsunabhängig ermittelt werden. Bei Einsatz kleiner Ladungsträgerdichten (nicht-entarteter Halbleiter) bestimmt sich D über die Einstein-Relation

$$D_{e,h} = \frac{k_B T}{e} \mu_{e,h} \quad (6.32)$$

aus der Beweglichkeit der Ladungsträger.

Die diffusiven Transporteigenschaften von Exzitonen, Elektronen und Löchern in Abhängigkeit der Temperatur und Filmdicke wurden in Experimenten und Berechnungen mehrfach untersucht [Hil89, Bas91, Dzy95, Ric98, Emi01b]. Experimentell konnte in dünnen Quantenfilmen eine starke Temperaturabhängigkeit der Mobilität μ nachgewiesen werden [Hil89, Ric98]. Unterhalb von 50 K wurden jedoch in zeitaufgelösten PL-Experimenten an 4 nm dicken GaAs/AlGaAs-Systemen exzitonische und ambipolare Mobilitäten $\mu < 10^3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und somit Diffusionskonstanten $D_{exc} < 1 \text{ cm}^2/\text{s}$ gefunden, die theoretisch der Streuung an Grenzflächenrauigkeit zugeschrieben wurde [Bas91].

Ähnlich niedrige Diffusionskonstanten wurden auch in rauen GaAs-(311)A Quantenfilmen für $T = 10 \text{ K}$ ermittelt [Ric97, Emi01b]. Bei der Untersuchung der PL-Emissionsintensität eines Quantendrahts bzw. Quantenpunkts in Abhängigkeit von der Entfernung zu einer lokalisierten optischen Anregung wurde eine exponentielle Abnahme der Intensität auf einer 100 nm Längenskala beobachtet. Die daraus ermittelte Drift-Diffusionskonstante des Quantenfilms zu $D_{QW} \leq 0.1 \text{ cm}^2/\text{s}$ abgeschätzt werden.

Somit können mit Hilfe von Lebensdauern T_1 ebenfalls Diffusionslängen L_{diff} für den diffusiven Transport angegeben werden:

$$L_{diff} = \sqrt{D_{QW} \tau}. \quad (6.33)$$

Für die in den fs-Experimenten ermittelten Besetzungslbensdauer in einzelnen Quantenpunkten von bis zu 165 ps bestimmt sich die Diffusionslänge zu: $L_{diff} \leq 140$ nm.

Aufgrund der hier abgeschätzten Transportlängen von L_{ball} und L_{diff} , die unterhalb der optischen Auflösung des Experiments von 200 nm sind, folgt, dass Ladungsträgertransport für die in den in dieser Arbeit durchgeführten fs-Experimenten nur von untergeordneter Bedeutung ist. Insbesondere kann durch Ladungsträgertransport nicht der Abfall der Reflektivitätsänderung auf einer 2 ps Zeitskala erklärt werden.

6.4.2 Ladungsträgerrelaxation

Die Ursache für den beobachteten Abfall der Reflektivitätsänderung liegt folglich in der Ladungsträgerrelaxation begründet. Ladungsträgerrelaxation erfolgt unter Phononemission (Ladungsträger-Phononstreuung). Allerdings kann auch Ladungsträger-Ladungsträgerstreuung zu einer energetischen Umverteilung der Ladungsträger führen. Die unterschiedlichen Streumechanismen und deren möglichen Einfluss auf das fs-Experiment werden im Folgenden diskutiert.

Ladungsträger-Phononstreuung:

Einen wichtigen Beitrag zur Ladungsträgerrelaxation liefert Ladungsträger-Phononstreuung. Gerade nach einer anfänglichen nicht-thermischen Ladungsträgerverteilung emittieren Ladungsträger LA- und LO-Phononen und geben so Energie an das umgebende Gitter ab. Exzitonen werden gebildet. Die Bildung findet in dünnen Quantenfilmen innerhalb der ersten 20 ps nach Anregung statt, die der Phononstreuung zugeschrieben wird [Dam90].

In einer ersten Näherung kann der Übergang von einem Anfangszustand i in einen energetisch tieferen Zustand f über die Emission eines Phonons über Fermis Goldenene Regel beschrieben werden [Ino92]:

$$\tau_{i \rightarrow f} = (2\pi/\hbar) \sum_q |M_q^{if}|^2 [N_q + 1] \delta(E_{ex}^f - E_{ex}^i + \hbar\omega_q) \quad (6.34)$$

mit den Matrixelementen:

$$M_q^{if} = \langle \psi_{ex}^i | e^{iqr} | \psi_{ex}^f \rangle \begin{cases} D\sqrt{\hbar q/2\rho c\Omega} & \text{(LA-Phonon)} \\ \sqrt{2\pi e^2 \omega_{LO} (1/\epsilon_\infty - 1/\epsilon_0)/q\sqrt{\Omega}} & \text{(LO-Phonon)} \end{cases} \quad (6.35)$$

und der Phononbesetzung $N_q = \left[e^{\left(\frac{\hbar\omega_q}{k_B T}\right)} - 1 \right]^{-1}$. Dabei ist Ω das Systemvolumen, D das Deformationspotential, ρ die Dichte und c die Schallgeschwindigkeit des Quantenfilmmaterials³.

Analog wird der Übergang von einem Anfangszustand f in einen energetisch höheren Zustand i unter Absorption eines Phonons beschrieben:

$$\tau_{i \leftarrow f} = (2\pi/\hbar) \sum_q |M_q^{if}|^2 N_q \delta(E_{ex}^i - E_{ex}^f - \hbar\omega_q) \quad (6.36)$$

Für eine Überschussenergie, die mit $E_{exc} = \hbar\omega_{LO} \simeq 36$ meV der LO-Phonenergie entspricht, betragen typische Streuzeiten 180 fs [Kas85].

³Für GaAs: $\rho = 5320$ kg/m³, $c = 3700$ m/s, $D_e = 8.6$ meV, $D_h = 6.7$ meV

Mit Abnahme der Überschussenergie wird eine starke Zunahme der Phonon-Streuzeit erwartet, da die Emission von LO-Phononen unterdrückt ist. Findet die Anregung deutlich unterhalb der LO-Phononenergie statt, ist in dünnen Halbleiterquantenfilmen Deformationspotentialstreuung der Hauptstreumechanismus [Tak85]. Piezoelektrische Streuung sowie LO-Phononstreuung spielt demgegenüber eine untergeordnete Rolle.

Die Streuraten an akustischen und optischen Phononen besitzen eine starke Temperaturabhängigkeit. Über die homogene Linienbreite in temperaturabhängigen Experimenten können die Streuraten für die Absorption eines Phonons ermittelt werden. Dabei gilt [Sch86, Gam95a]:

$$\Gamma_{hom}(T) = \Gamma_{hom}(0) + \gamma_{AC}T + \gamma_{LO} \left(\frac{1}{e^{\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right)} - 1} \right) \quad (6.37)$$

Gammon *et al.* bestimmten an einzelnen lokalisierten Exzitonen die homogenen Linienbreiten im Temperaturbereich 10–300 K. Sie bestimmten dadurch akustische Phononstreuzeiten von $0.0015 \text{ (ps K)}^{-1}$ [Gam96b]. Typische Werte für dünne Quantenfilme liegen bei $0.004 \text{ (ps K)}^{-1}$ [Sch86]. Für eine nominelle Temperatur von 12 K wird folglich eine Streurrate von $\tau_{12\text{K}}^{-1} \lesssim 0.05 \text{ ps}^{-1}$ erwartet.

Aufgrund der niedrigen Streuraten kann LA-Phononstreuung als Mechanismus für den beobachteten schnellen Abfall der Reflektivitätsänderung ausgeschlossen werden. Der Einsatz einer derart hohen Überschussenregie von 27 meV inklusive des hochenergetischen Ausläufers legt nahe, dass LO-Phonon-Streuung aufgrund der hohen Streurrate zu der schnellen Ladungsträgerrelaxation beiträgt.

Ladungsträger-Ladungsträgerstreuung:

Mit zunehmender Anregungsdichte gewinnt Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung zunehmend an Bedeutung. Schon für Ladungsträgerdichten größer $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ trägt sie in dünnen Quantenfilmen bereits entscheidend zur Ladungsträgerrelaxation bei [Dam90]. Die Herleitung und Diskussion der Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung in Bornscher Näherung findet sich in zahlreichen Veröffentlichungen (z. B. [All92, Kan96]). Die Problematik der theoretischen Berechnung der Wechselwirkung liegt in der Vielteilchennatur der Streuung begründet, da die Coulomb-Wechselwirkung sehr stark durch die Anwesenheit anderer Ladungsträger des Plasmas beeinflusst wird. Daher ist es notwendig, die kollektive (plasmaartige) Anregung, sowie die Einteilchenanregung des Elektronenplasmas zu berücksichtigen. Das ist gleichbedeutend mit der Berechnung der dynamisch abgeschirmten Dielektrizitätskonstanten $\epsilon(q, \omega)$. Diese hängt sowohl von der Frequenz ω als auch dem Wellenvektor q der Anregung ab.

Im Folgenden werden nur die grundlegenden Ergebnisse kurz skizziert: So können unter Annahme von isotropen Verteilungsfunktionen die Streuraten für die Streuung in einen Zustand über einen boltzmannartigen Ansatz durch

$$\begin{aligned} \Gamma_{in}^{(e,h)}(\mathbf{k}_1, f) = & \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\alpha, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_4} 2|W[\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1, \epsilon_{(e,h)}(k_2) - \epsilon_{(e,h)}(k_1)]|^2 f_{(e,h)}(k_2)[1 - f_{\alpha}(k_3)]f_{\alpha}(k_4) \\ & \times \delta_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3, \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_4} \delta[\epsilon_{(e,h)}(k_1) - \epsilon_{(e,h)}(k_2) + \epsilon_{\alpha}(k_3) - \epsilon_{\alpha}(k_4)] \quad , \quad \alpha = e, h \end{aligned} \quad (6.38)$$

beschrieben werden. W beschreibt das abgeschirmte Coulomb-Potential. Dies ist gegeben durch [Bin92]:

$$W(q, \omega) = \frac{V(q)}{1 - V(q)P(q, \omega)} = V(q)\epsilon^{-1}(q, \omega) \quad (6.39)$$

und beinhaltet das unabgeschirmte Coulomb-Potential

$$V(q) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon V q^2}, \quad (6.40)$$

sowie die dynamische Abschirmung, die durch die Intrabandpolarisation in „random phase“-Näherung bestimmt ist:

$$P(\mathbf{q}, \omega) = \lim_{\delta \rightarrow 0} 2 \sum_{\alpha, \mathbf{k}} \frac{f_{\alpha}(k) - f_{\alpha}(|\mathbf{q} + \mathbf{k}|)}{\epsilon_{\alpha}(k) - \epsilon_{\alpha}(|\mathbf{q} + \mathbf{k}|) + \hbar\omega + i\delta}. \quad (6.41)$$

Dabei ist ϵ die Hintergrunddielektrizitätskonstante und V das Kristallvolumen.

Analog kann auch die Streurrate aus einem Zustand beschrieben werden.

Die Dynamik des Zustands ergibt sich dann über die Boltzmann Gleichung:

$$\left. \frac{\partial f_{\alpha}(k_1)}{\partial t} \right|_{cc} = \Gamma_{in}^{\alpha}[k_1, f][1 - f_{\alpha}(k_1)] - \Gamma_{out}^{\alpha}[k_1, f]f_{\alpha}(k_1). \quad (6.42)$$

Ladungsträger-Ladungsträgerstreuung weist eine starke Dichteabhängigkeit auf. In Quantenfilmen wurde für Anregungsdichten unterhalb 10^{11} cm^{-2} eine näherungsweise lineare Besetzungsdichteabhängigkeit der Relaxationsrate gefunden $\Gamma(N) \propto N$ [Hon89, Kas93, Sno94]. Für einen 5.1 nm dicken GaAs-Quantenfilm bei $T = 6 \text{ K}$ wurde beispielsweise für Anregungsdichten zwischen $N = 10^9$ und 10^{11} cm^{-2} eine Streurrate von $\Gamma_{cc}(N) \simeq 0.5 \cdot 10^2 \cdot N \text{ s}^{-1}$ ermittelt. Bei den Untersuchungen der Reflektivitätsänderungen wurde eine Anregungsdichte von $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ bestimmt (vgl. Abs. 6.3). Daraus ergibt sich als Abschätzung für die Ladungsträger-Ladungsträger-Streurrate von $\Gamma_{cc}(5 \cdot 10^9) \approx 0.25 \text{ ps}^{-1}$.

Die aus der Anregedichte abgeschätzte Streuzeit von 4 ps liegt in der Größenordnung des beobachteten Signalabfalls, ist allerdings länger als der in den Experimenten beobachtete Signalabfall (vgl. Abb. 6.5). Anhand dieser Abschätzung darf folglich Ladungsträger-Ladungsträger als dominanter Mechanismus nicht ausgeschlossen werden. Das Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung für die beobachtete Dynamik der Reflektivitätsänderung dennoch nur eine geringe Rolle spielt belegen Experimente unter Variation der Überschussenergie des Anregeimpulses.

6.4.3 Einfluss der Überschussenergie

Zur Bestätigung, dass LO-Phononstreuung die dominante Ursache für den beobachteten schnellen exponentiellen Abfall zu kurzen positiven Verzögerungszeiten ist, wird der Einfluss der Überschussenergie auf die Signaldynamik anhand eines zweiten Experiments untersucht. Bei der Durchführung dieses Experiments besitzt der Anregeimpuls eine Zentralenergie von $E_{exc} = 1.675 \text{ eV}$. Dies entspricht einer Überschussenergie von 15 meV, die somit deutlich unterhalb der Energie für LO-Phononemission ist. Die Leistung des Anregeimpulses beträgt, wie in den bislang dargestellten Experimenten 100 nW (vgl. Abs. 6.3). Die Zentralenergie

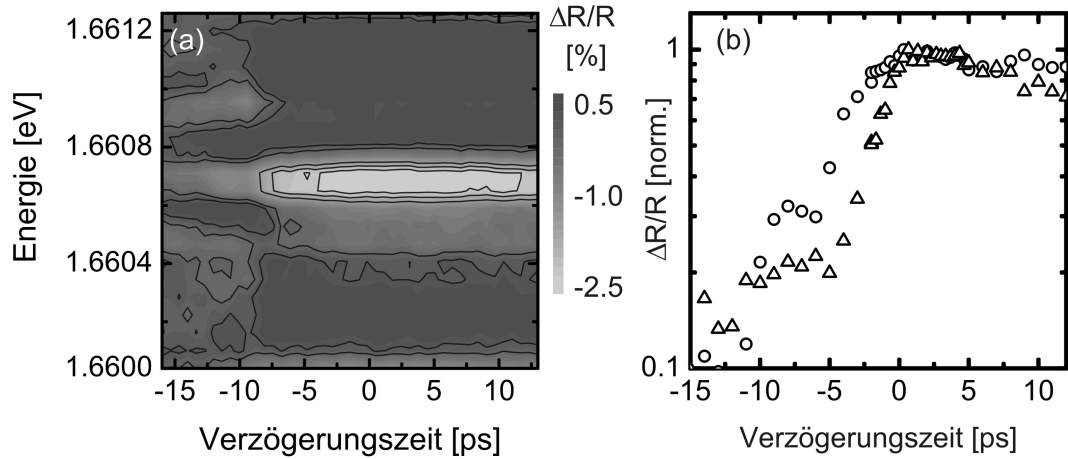


Abbildung 6.19: Dynamik der Reflektivitätsänderung bei Anregung mit einer Überschussenergie von 15 meV. Der Anregimpuls wurde dabei auf 1.675 eV zentriert. Die Anregeleistung betrug wieder 100 nW. (a) Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Verzögerungszeit und der Detektionsenergie. Deutlich sichtbar ist die scharfe Reflektivitätsänderung der Resonanz zu positiven Verzögerungszeiten. Für negative Verzögerungszeiten sind die spektralen Oszillationen des anregungsinduzierten Dephasierens erkennbar. (b) Dynamik der Reflektivitätsänderung bei der Detektionsenergie der Resonanz ($E - \text{det} = 1.6607$ eV. Weder bei der spektral aufgelösten (\circ), noch bei der über 600 μeV integrierten Detektion (\triangle) werden Anzeichen eines biexponentiellen Abfalls erkennbar.

des Abtastimpulses beträgt 1.66 eV bei einer Bandbreite von 20 meV und einer Leistung von 60 nW.

Abb. 6.19 zeigt die Dynamik der Reflektivitätsänderung einer Quantenpunktresonanz auf einer Zeitskala von -16 bis 13 ps. Eine Reflektivitätsänderung wird zu positiven und negativen Verzögerungszeiten beobachtet (Abb. 6.19 (a)). Das $\Delta R/R$ -Signal zeigt für $\Delta t < 0$ die Signatur des EID (Abb. 6.19 (b)). Zu negativen Verzögerungszeiten wird ein exponentieller Abfall beobachtet. Die Abfallzeit beträgt 8 ps. Zu positiven Verzögerungszeiten wird auf dieser Zeitskala ein einfach exponentieller Abfall der Reflektivitätsänderung gefunden. Die Abfallzeit beträgt 40 ps. Es wird insbesondere **kein** biexponentieller Abfall beobachtet. Das spektral aufgelöste ((b), \circ) und das über einen Spektralbereich von 2 meV integrierte Signal ((b), \triangle) zeigen in diesem Zeitbereich die gleiche Zerfallskonstante von ungefähr 40 ps (Abb. 6.19 (b)).

Der Vergleich dieses Experiments mit den Experimenten bei einer Überschussenergie des Anregimpulses von 27 meV zeigt, dass die hohe Überschussenergie, die zuvor eingesetzt wurde, den in Abs. 6.2.2 beobachteten biexponentiellen Abfall der Reflektivitätsänderung verursacht (vgl. Abb. 6.5). Dies ist ein eindeutiger Hinweis, dass die Emission von LO-Phononen zu einer schnellen Ladungsträgerrelaxation auf einer 2 ps Zeitskala verursacht, das somit zu der in Abb. 6.5 dargestellten Signaldynamik zu kurzen positiven Verzögerungszeiten führt.

QD	Energie [eV]	Lebensdauer [ps]	Dipolmoment[D]	$\Delta R/R(\Delta t = 5ps)$ [%]	$\Delta R_{max}/R$ [%]
○	1.6559	165	50	0.28	4.2
□	1.66147	65	75	0.90	8.6
△	1.6672	46	95	0.215	15.9

Tabelle 6.2: Eigenschaften der in Abb. 6.5 dargestellten Quantenpunkte.

6.5 Statistische Eigenschaften des 5.1 nm dicken Quantenfilms

Die spektral aufgelöste Untersuchung der Reflektivitätsänderung $\Delta R/R_0$ bietet neben der Detektion und Bestimmung der Polarisationsdynamik auch die Möglichkeit, Einblick in die statistischen Eigenschaften der Quantenfilme zu gewinnen. So können neben der Verteilung der Amplitude der Reflektivitätsänderung zu festen Verzögerungszeiten Δt , die Lebensdauer von Ladungsträger in unterschiedlichen Exzitonenzuständen bestimmt werden. Dies bietet dann die Möglichkeit Abschätzungen über die Verteilung von Dipolmomenten für die beobachteten Quantenpunktresonanzen zu gewinnen. Zu diesem Zweck werden an mehreren unterschiedlichen Positionen des Quantenfilms Spektren der Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Verzögerungszeit Δt durchgeführt. Die experimentellen Parameter werden hierzu wie in Abs. 6.2 beschrieben gewählt.

6.5.1 Statistische Verteilung der Lebensdauern und Dipolmomente

In Abs. 6.2.4 wurde dargestellt, dass die Dynamik der Reflektivitätsänderung für $\Delta t \gg 0$ durch die Besetzungsdynamik gegeben ist. Der Zerfall der Besetzung ist durch die Zerfallsrate Γ bestimmt. Sie beinhaltet strahlende Rekombination (Γ_{str}), Ladungsträgerrelaxation (Γ_{rel}) und zusätzliche nichtstrahlende Zerfallskomponenten (Γ_{nr}). Strahlender Zerfall führt zu einer Photonenemission mit der Photonenenergie, die der Resonanzenergie des Übergangs entspricht [Muk95]. Die strahlende Rekombinationsrate ist direkt mit dem Dipolmoment des Übergangs verknüpft [Muk95].

Daher kann unter der Annahme sphärischer Quantenpunkte aufgrund der beobachteten Besetzungsdynamik eine Abschätzung der Obergrenze für Dipolmomente von einzelnen Quantenpunkten gegeben werden [Run02]. Legt man reinen strahlenden Zerfall zugrunde ($\Gamma = \Gamma_{rel}$), so ist das Dipolmoment direkt aus dessen Energieposition und Lebensdauer gegeben [Mey91, Sti02a, Run02]:

$$\mu_{QD}^2 = \frac{3\pi\epsilon_0\hbar c^3}{n\omega_{QD}^3\tau_{rad}} \quad (6.43)$$

Lebensdauer

Untersucht man die Besetzungslbensdauer unterschiedlicher Quantenpunkte in Abhängigkeit von der detektierten Resonanzenergie ($T_1(E_{det})$), ergibt sich das in Abb. 6.20 (a) dargestellte Bild. Die Lebensdauern unterschiedlicher Quantenpunkte des 5.1 nm dicken Quantenfilms fluktuieren stark mit der Detektionsenergie. Generell ist im niederenergetischen Spektrum ($E_{det} < 1.6575$ eV) eine nahezu konstante Lebensdauer von ungefähr

160 ps zu beobachten. Dies ist gleichbedeutend mit einer Rekombinationsrate von ungefähr 0.06 ps^{-1} . Zu höheren Energien wird eine erhöhte Fluktuation der Lebensdauer beobachtet. Zunächst ist eine Tendenz zu einer Abnahme der Lebensdauer mit ansteigender Detektionsenergie erkennbar. Insbesondere im Bereich oberhalb einer Detektionsenergie von $E_{det} < 1.6625 \text{ eV}$ wird diese Tendenz deutlich. Eine minimale Lebensdauer von 15 ps wird bei einer Detektionsenergie von 1.662 eV gefunden. Gleichzeitig werden aber auch Lebensdauern über 200 ps detektiert. Bei Detektionsenergien oberhalb 1.665 eV kehrt sich diese Tendenz um. In diesem Bereich wird wieder eine Zunahme der Lebensdauer mit wachsender Detektionsenergie ermittelt.

Dipolmoment

Unter der Annahme eines rein strahlenden Zerfalls ($\Gamma = \Gamma_{rad}$) lassen sich über Gln. 6.43 Dipolmomente in Abhängigkeit der Resonanzenergie bestimmen. So ergeben sich beispielsweise für die Quantenpunkte, deren Transienten in Abb. 6.5 dargestellt sind, in guter Übereinstimmung mit theoretischen Erwartungen Dipolmomente von 48 - 95 D bestimmt (vgl. Tab. 6.2).

Abb. 6.20 (b) zeigt die statistische Verteilung der Dipolmomente des Quantenfilms **D**. Am niederenergetischen Rand wird ein näherungsweise konstantes Dipolmoment von etwa 48 D bestimmt. Eine klare Tendenz zu wachsenden Dipolmomenten mit wachsender Resonanzenergie wird deutlich. Gleichzeitig wird eine zunehmende Fluktuation deutlich. Ein maximales Dipolmoment wird für eine Detektionsenergie $E_{det} \simeq 1.662 \text{ eV}$ mit 160 D ermittelt. Für noch höhere Detektionsenergien nehmen die Dipolmomente wieder ab.

Vergleicht man die Verteilung der Dipolmomente mit den theoretischen Erwartungen für ein Gauß-korreliertes Unordnungspotential (vgl. [Run02]), ergeben Theorie und Experiment vor allem im niederenergetischen Bereich eine gute Übereinstimmung. Die experimentell bestimmten Lebensdauern und die berechneten Dipolmomente stehen im niederenergetischen Bereich in guter Übereinstimmung zu den theoretischen Vorhersagen für Dipolmomente und zu Ergebnissen von Experimenten an ähnlichen GaAs-Quantenfilmen [And99, Sti02a, Gue02]. Weiterhin zeigt sich gerade in diesem Bereich die erwartete Zunahme, sowie die erhöhte Fluktuation der inversen Lebensdauer und folglich der Dipolmomente mit wachsender Detektionsenergie (Abb. 6.20 (b)–). Auch die Abnahme der inversen Lebensdauer und Dipolmomente für hohe Resonanzenergien wird beobachtet.

Dennoch zeigt die experimentell ermittelte Verteilung einen deutlichen Unterschied zu den theoretischen Erwartungen. Zwei Eigenschaften sind auffallend: Zum einen werden entgegen den theoretischen Erwartungen Zustände mit Lebensdauern oberhalb von 400 ps bzw. Dipolmomente unter 20 D nicht detektiert. Zum anderen werden mit zunehmender Detektionsenergie gegenüber den theoretischen Erwartungen (vgl. Abs. 3.1.2) deutlich zu große Dipolmomente bestimmt.

Ausschlaggebend für die Abwesenheit von Dipolmomenten unterhalb von 20 D ist, dass Quantenpunktzustände mit niedrigen Dipolmomenten geringe Absorptionskoeffizienten aufweisen. Daher werden für diese maximale Reflektivitätsänderungen $\Delta R/R_0 \lesssim 10^{-3}$ erwartet. Folglich können sie in den durchgeführten Experimenten nicht mit hinreichender Genauigkeit aufgelöst werden. Es ist allerdings naheliegend, dass das Kontinuum der PL-Emission, welches zusätzlich zu den einzelnen scharfen PL-Emissionsresonanzen detektiert werden kann, durch strahlende Rekombination zahlreicher derartiger Zustände gebildet wird (vgl. Abb. 6.2).

Einfluss von nichtstrahlendem Besetzungszustand

Der zweite Beobachtung, dass gerade im höherenergetischen Bereich zu hohe Dipolmomente bestimmt werden, ist auf die Annahme eines rein strahlenden Zerfalls zurückzuführen. Während diese Annahme für Exzitonengrundzustände niedriger Resonanzenergie gerechtfertigt scheint, ist diese Annahme für höherenergetische Resonanzen nicht angemessen, sondern nichtstrahlende Zerfallsprozesse müssen mitberücksichtigt werden. Hierfür sprechen mehrere Beobachtungen. Strahlender Zerfall führt zu einer Photonenemission mit der Photonenenergie, die der Resonanzenergie des Übergangs entspricht [Muk95]. Das Auftreten einer Emission im PL-Spektrum wird erwartet. Während im niederenergetischen PL-Spektrum scharfe Resonanzen auf derart strahlenden Zerfall hinweisen, können vor allem im hochenergetischen Bereich des Spektrums, keine scharfen Emissionslinien detektiert werden (vgl. Abb. 6.2). Gleichzeitig weisen allerdings scharfe Resonanzen im Spektrum der Reflektivitätsänderung zu positiven Verzögerungszeiten auf eine Ladungsträgerbesetzung in lokalisierten Zuständen hin (vgl. Abb. 6.3). Folglich vermindern nichtstrahlende Zerfallsprozesse die Lebensdauer in hochenergetischen Resonanzen.

Ein weiterer Hinweis, dass nichtstrahlende Prozesse zu einer Überhöhung des Dipolmoments führen, zeigt die Bestimmung der Impulsfläche Θ . Für eine Abtastimpulsleistung von 60 nW, wie sie in dem Experiment eingesetzt wurde, ist $\Theta \geq \pi$ für Dipolmomente > 120 D bei nahezu resonantem Abtastimpuls nach Gln. 3.69. Eine Umkehr der Phasenbeziehung wird erwartet. Dies geht einher mit einem Vorzeichenwechsel in der Reflektivitätsänderung. Positive Reflektivitätsänderungen müssten detektiert werden. Die Detektion einer negativen Reflektivitätsänderung auch bei nahezu resonantem Abtastimpuls limitiert das Dipolmoment auf unterhalb 120 D. Die Berechnung größerer Dipolmomente zusammen mit der Detektion negativer Reflektivitätsänderungen zeigt deutlich die Überschätzung des Dipolmoments aufgrund von Ladungsträgerrelaxation.

Die Lebensdauern und Dipolmomente deuten folglich darauf hin, dass die Lebensdauer der Quantenpunktbesetzung im niederenergetischen Bereich im Wesentlichen durch die strahlende Rekombinationszeit bestimmt ist. Dagegen müssen für die Beschreibung der Dynamik der Reflektivitätsänderung für Quantenpunkte höherer Resonanzenergie nichtstrahlende Zerfallsmechanismen berücksichtigt werden, die zu einer Verminderung der Lebensdauer führen. Um einen Einblick in die Relaxationsmechanismen unterschiedlicher Quantenpunkte zu bekommen, müssen allerdings zeitaufgelöste Experimente mit resonanter optischer Anregung durchgeführt werden.

6.5.2 Ausdehnung der Quantenpunkte

Über die bestimmten Dipolmomenten können auch Aussagen über die Ausdehnung einzelner Quantenpunkte getroffen werden. So kann eine Abschätzung unter Annahme zylindrischer Quantenpunkte gegeben werden (vgl. Abs. 5.3). Dazu wird folgendes 2D-Modell herangezogen: Die Exzitonen lokalisieren in zylindrischen Inseln deren Dicke gegenüber der Umgebung um eine ML erhöht ist. Das entstehende Einschlusspotential beträgt 9.2 meV. Die Wellenfunktion in z-Richtung bleibt unberücksichtigt. Die Berechnung erfolgt in der COM-Näherung. Die Wellenfunktionen $\psi_\alpha(\mathbf{R})$ kann aus der Lösung der 2-D Schrödingergleichung

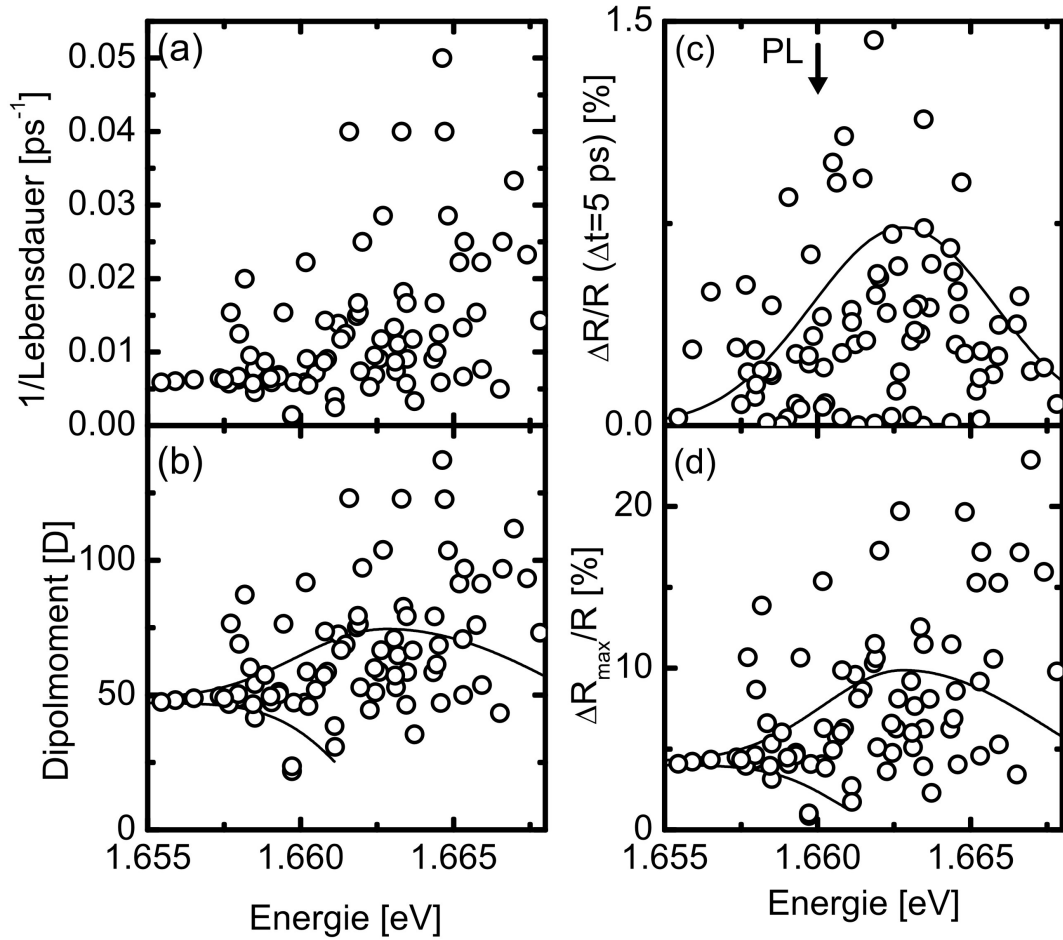


Abbildung 6.20: **Experimentell bestimmte Eigenschaften unterschiedlicher Quantenpunkte des 5.1 nm-Quantenfilms:** (a) Inverse Lebensdauer unterschiedlicher Quantenpunkte. (b) Dipolmoment der unterschiedlichen Quantenpunkte berechnet mit Gln. 6.43. (c) Aus den Experimenten bestimmten Reflektivitätsänderungen der unterschiedlichen Resonanzen bei der Verzögerungszeit $\Delta t = 5$ ps. Die maximale Reflektivitätsänderung wird für eine Energie von 1.662 eV detektiert. Unterhalb dieser Energie nimmt die Reflektivitätsänderung mit abnehmender Resonanzenergie tendenziell ab. Oberhalb nimmt $\Delta R/R_0$ mit wachsender Resonanzenergie ebenfalls ab. (...) Die gemittelte Reflektivitätsänderung ist bei 1.6628 eV zentriert und besitzt eine Halbwertsbreite von 4.5 meV. ↓: Position der maximalen PL-Emission. (d) Erwartete maximale Reflexionsänderung bei einer Monochromatorauflösung von $60 \mu\text{eV}$ und einer räumlich-optischen Auflösung von 220 nm. Die erwarteten Dipolmomente und Reflektivitätsänderungen berechnet aus einem Gauß-korrelierten Unordnungspotential mit einer Potentialamplitude von 5 meV und einer Korrelationslänge $\xi = 10$ nm (–, vgl. Abb. 3.4 in Abs. 3.1.2) weisen auf nichtstrahlende Zerfallsprozesse hin.

gewonnen werden:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2M} \nabla_R^2 + V(\mathbf{R}) \right) \psi_\lambda(\mathbf{R}) = E_\lambda \psi_\lambda(\mathbf{R}),$$

wobei $V(\mathbf{R})$ das effektive Schwerpunktpotential beschreibt, das aus der Faltung des Monolagenpotentials mit der 1s-Exzitonenwellenfunktion entsteht (vgl. Abs. 3.1.2). Auf Basis dieses Modells lassen Dipolmomente sowie die Energieseparation zwischen Exzitongrundzustand und erstem angeregten Zustand in Abhängigkeit des Durchmessers bestimmen. Für die aus den Experimenten bestimmten Dipolmomente werden Quantenpunktdurchmesser von 40 – 60 nm errechnet. Diese stehen in guter Übereinstimmung zu der Abschätzung der Ausdehnung aus PL-Emissions und Autokorrelations-Experimenten (vgl. Abs. 5.3). In diesen wurde anhand der Energiedifferenz von 2.8 meV zwischen Exzitongrundzustand und erstem angeregten, optisch aktivem Zustand ein Quantenpunktdurchmesser von 45 nm bestimmt.

Es stellt sich natürlich die Frage, ob die Beschreibung der Quantenpunkte durch ein zylindersymmetrisches Potential angemessen ist. Dies ist insbesondere von Interesse, da die Form des Quantenpunkts entscheidenden Einfluss auf das Dipolmoment und die Lebensdauer besitzt [Sug95, Thr02]. So wird z. B. für einen asphärischer Quantenpunkt eine erhöhte Lebensdauer im Vergleich zu einem sphärischen Quantenpunkt gleichen Volumens errechnet [Thr02].

Gegen die Annahme zylindersymmetrischer Quantenpunkte spricht, dass an ähnlichen dünnen GaAs(100)-Quantenfilmen anhand von STM-Bildern Monolageninseln beobachtet wurden, die entlang der $(\bar{1}10)$ -Richtung verlängert sind [Gam96a]. An diesen Strukturen wurde bei PL-Emissions- und PLE-Experimenten eine Energie-Feinaufspaltung von angeregten Quantenpunktzuständen beobachtet. Die Energieaufspaltung betrug hierbei zwischen 20 und 45 μeV und wurde der Formanisotropie zugeschrieben [Gam96a]. Die bei der Durchführung dieser Experimente beobachtete starke Abhängigkeit der Intensität und der Emissionsenergie von der Polarisationsrichtung des eingestrahnten Anregelasers erhärtet diese Annahme. Die Eigenfunktionen der lokalisierten Exzitonen in derartigen asymmetrischen Quantenpunkten, sowie deren räumliche Ausdehnung werden wesentlich durch die unterschiedliche Ausdehnung entlang des Quantenfilms bestimmt. Eine Aufhebung der für zylindersymmetrische Quantenpunkte entarteten angeregten Quantenpunktzustände wird erwartet. Zudem weisen sie ein anisotropes Dipolmoment in der Quantenfilmebene auf, das sich in Absorptionsspektren durch die Abhängigkeit des Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ von der Polarisationsrichtung des eingestrahnten Anregelasers zeigt. Als Folge des anisotropen Dipolmoments wird nach Gln. 6.43 eine anisotrope strahlende Lebensdauer erwartet.

Bei der Durchführung der fs-Nahfeld-Experimente wurden bislang keine Anzeichen für eine derartige Formanisotropie gefunden. So konnte keine Feinaufspaltung beobachtet werden. Auch der Unterschied in der strahlenden Rekombinationsrate, der sich als biexponentieller Abfall im $\Delta R/R_0$ -Signal zeigen sollte, wurde nicht gefunden. Folglich ist eine Beschreibung der lokalisierten Zustände über zylindersymmetrische Quantenpunkte angemessen.

6.5.3 Detektierte Reflektivitätsänderung

Eine weitere charakteristische statistische Eigenschaft ist die Amplitude der Reflektivitätsänderung. Abb. 6.43 (c) zeigt das detektierte $\Delta R/R$ -Signal unterschiedlicher Quantenpunkte bei einer Verzögerungszeit von $\Delta t = 5$ ps und einer Anregeimpulsleistung von 100 nW. Deutlich sind die starken Fluktuationen der Amplitude unterschiedlicher Quantenpunkte zu

erkennen, die nahezu keine Korrelation zu den bestimmten Dipolmomenten aufweist. Die Verteilung weist näherungsweise eine Gauß-Form auf. Die maximale Reflektivitätsänderung wird bei einer Energie von 1.662 eV detektiert.

Werden die unterschiedlichen Reflektivitätsänderungsspektren aufsummiert, ergibt sich den Erwartungen entsprechend eine näherungsweise inhomogen verbreiterte gaußförmige Reflektivitätsänderung des Quantenfilms (Abb. 6.20 (c) –). Sie ist bei einer Energie von 1.6628 eV zentriert. Die Anpassung mit einer Gauß-Kurve gibt die Möglichkeit, die maximale Stokes-Verschiebung zwischen PL-Emission und Absorption zu bestimmen. Im Fernfeld ist diese für einen ungeordneten Quantenfilm nach vollständiger Relaxation der Ladungsträger gegeben durch [Chr90]:

$$E_{PL} = E_{abs} - \Delta E_{Stokes}(T) = E_{abs} - \frac{\sigma_E^2}{k_B T}. \quad (6.44)$$

Für den 5.1 nm dicken Quantenfilm beträgt die Stokes-Verschiebung $\Delta E_{Stokes} = 2.8$ meV. Aus dieser Verschiebung kann unter Kenntnis der inhomogenen Linienbreite die tatsächliche Proben temperatur während der Durchführung Experimente abgeschätzt werden. Aus den PL-Experimenten wurde für den Quantenfilm **D** eine inhomogene Verbreiterung von $\sigma_E = 1.95$ meV gefunden (vgl. Abs. 5.1, Abb. 5.2). Eine Stokes-Verschiebung von 2.8 meV wird nach Gln. 6.44 bei einer effektiven Proben temperatur von 17 K erreicht. Die tatsächliche Proben temperatur ist unterhalb des durch Gln. 6.44 abgeschätzten Werts. Dies ist eine Folge der nicht vollständig thermalisierte PL- Emissionsintensität. Eine nicht-vollständig thermalisierte Verteilung führt zu einer Verminderung der Stokes-Verschiebung zwischen PL-Emission und Absorption. Folglich ist die tatsächliche Proben temperatur zwischen dem nominellen Wert von 12 K und der aus den Experimenten bestimmten von 17 K.

6.5.4 Maximale Reflektivitätsänderung

Aus den vorher berechneten Dipolmomenten lassen sich zusammen mit den detektierten Linienbreiten $\hbar\gamma$ die maximalen Reflexionsänderungen abschätzen. Für eine absorptive, lorentzförmige Linienform gilt dabei für den Absorptionsquerschnitt:

$$\sigma(\omega) = \frac{\omega \mu_{QD}^2}{nc\epsilon_0 \hbar} \frac{\gamma}{\gamma^2 + (\omega - \omega_0)^2} \quad (6.45)$$

Legt man die für sämtliche untersuchten Resonanzen eine monochromatorbegrenzte Linienbreite von $2\hbar\gamma = 100$ μ eV zugrunde, so lassen sich für eine optische Auflösung von 220 nm maximale Reflektivitätsänderungen $\Delta R/R_0 = \sigma(\omega_0)/(\pi r_{opt}^2)$ von 4 bis 20% abschätzen (Abb. 6.43 (d)). Die maximale Reflektivitätsänderung $\Delta R_{max}/R_0$ zeigt eine deutliche Abweichung zu der Gauß-Form, die für $\Delta R/R_0$ ermittelt wurde. Die Sättigungsreflektivitätsänderung besitzt die Verteilung der inversen Lebensdauern (Abb. 6.20 (a)). Am niederenergetischen Rand wird eine Sättigungsreflektivitätsänderung erwartet, die nahezu unabhängig von der Resonanzenergie ist und ungefähr 4.5% beträgt. Dies steht in guter Übereinstimmung zu der maximal detektierten Reflektivitätsänderung. Zu höheren Resonanzenergien zeigt sich die Tendenz zu wachsenden Reflektivitätsänderungen. Auch für hochenergetische Zustände werden Reflektivitätsänderungen von 10 bis 15% erwartet. Derart hohe Reflektivitätsänderungen übersteigen die bislang beobachteten $\Delta R/R_0$ -Signale um einen Faktor >2 . Dies lässt sich ebenfalls durch die Überschätzung der Dipolmomente

infolge nichtstrahlender Zerfallsprozesse erklären. Die Lebensdauerverminderung infolge nichtstrahlender Relaxation erhöht das errechnete Dipolmoment und dadurch ebenfalls die Erwartung der Reflektivitätsänderung.

Die fs-Nahfeldspektroskopie bietet folglich die Möglichkeit, die statistischen Absorptionseigenschaften dünner Quantenfilm zu untersuchen. Dabei wird deutlich, dass gerade im niederenergetischen Bereich des Spektrums der Reflektivitätsänderung vieles darauf hindeutet, dass der Ladungsträgerzerfall durch strahlende Rekombination dominiert wird. So stehen die ermittelte Ladungsträgerlebensdauer sowie die die daraus bestimmten Dipolmomente und maximalen Reflektivitätsänderungen in guter Übereinstimmung zu den tatsächlich beobachteten Reflektivitätsänderungen. Weiterhin konnten anhand der so errechneten Dipolmomente die zuvor mit Hilfe der PL-Autokorrelationsspektroskopie gewonnenen räumlichen Ausdehnungen von Quantenpunkten bestätigt werden (vgl. Abs. 5.3). Im höherenergetischen Bereich zeigt sich, dass die Lebensdauerdynamik nicht einzig durch strahlende Rekombination bestimmt ist. Ladungsträgerrelaxation muss mit berücksichtigt werden. Um jedoch einen genauen Einblick in die Relaxationsdynamik zu erhalten sind zeitaufgelöste Untersuchungen unter resonanter Anregung der angeregten Quantenpunktzustände notwendig.

6.6 Korrelierte hochenergetische Zustände - positive Reflektivitätsänderungen

Bei der derzeitigen Forschung liegt ein grosses Augenmerk auf der Dynamik gekoppelter optischer Anregungen in einzelnen Quantenpunkte [Che02, Tro00]. Insbesondere auf exzitonischen und biexzitonischen Anregungen sind von grossem Interesse. Diese bieten die prinzipielle Möglichkeit in zukünftigen Quantencomputern als logische Grundbausteine wie z. B. ein *conditional NOT* zu dienen [Bio00].

Eine biexzitonische optische Anregung zeichnet sich aus durch die Notwendigkeit einer zeitlich vorangestellten optischen Anregung des exzitonischen Übergangs. Die optische Anregung kann entweder durch eine Besetzung des exzitonischen Zustands oder eine nichtverschwindende Polarisation des exzitonischen Übergangs bedingt sein. Daher sollte bei der Durchführung der fs-Experimente biexzitonische Anregungen zu positiven Verzögerungszeiten eine biexzitonische optische Anregung erfolgen. Da die biexzitonische optische Anregung die Besetzung des exzitonischen Grundzustands bzw. eine Polarisation exzitonischen Übergangs benötigt, wird für den Quantenfilm **D** im Gegensatz zur Exzitonenresonanz eine positive Reflektivitätsänderung erwartet. Die Dynamik dieser positiven Reflektivitätsänderung sollte deswegen zu positiven Verzögerungszeiten durch die Besetzungsdynamik des Exzitonengrundzustands gegeben sein.

Die fs-Nahfeldspektroskopie bietet auch die Möglichkeit die Dynamik von biexzitonischen optischen Anregungen zu untersuchen. So werden bei der Durchführung der fs-Experimente derartige positive Reflektivitätsänderungen beobachtet (vgl. Abs. 6.2, Abb. 6.2). In den Spektren der Reflektivitätsänderung zeigen sich neben Resonanzen negativer Amplitude zusätzliche $\Delta R/R_0$ -Signale mit positivem Vorzeichen. Auffallend ist,

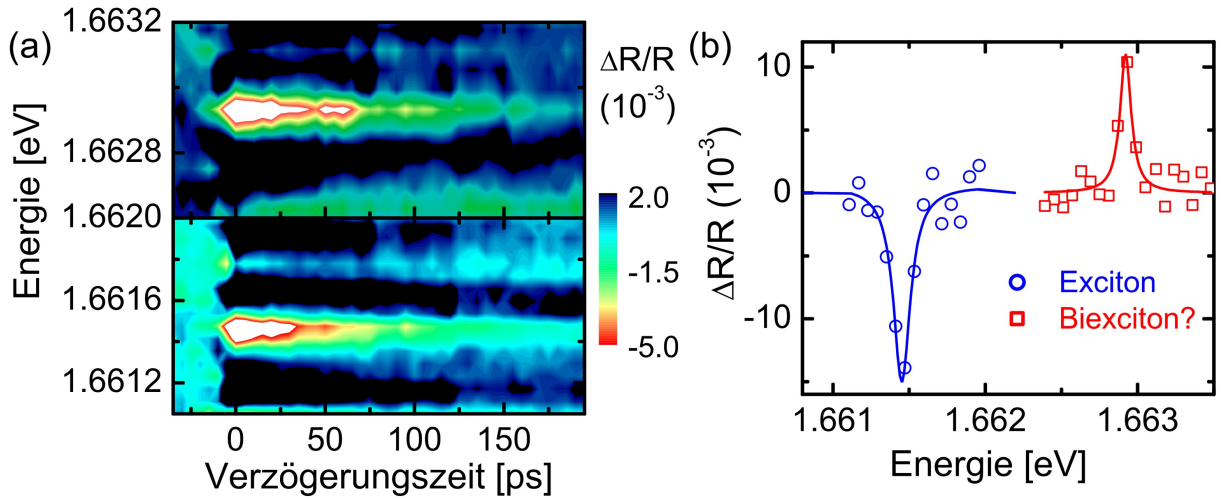


Abbildung 6.21: (a) $\Delta R/R$ zweier korrelierter Zustände in Abhängigkeit der Verzögerungszeit Δt und der Detektionsenergie E_{det} . (b) $\Delta R/R$ -Spektrum der in (a) dargestellten Zustände. Während der Exzitonengrundzustand eine negative Reflexionsänderung besitzt, ist $\Delta R/R$ bei dem dazu korrelierten Spektrum positiv.

dass für diese Reflektivitätsänderungen keine PL-Emission beobachtet wird.

Zur Untersuchung der Dynamik dieser positiven Resonanzen werden die experimentellen Parameter identisch zu den in Abs. 6.2 beschriebenen gewählt. Der Anregimpuls mit einer Bandbreite von 7 meV wird auf einer Energie von 1.687 eV zentriert. Der um Δt zeitlich verzögerte Abtastimpuls besitzt eine Zentralenergie von 1.65 eV und eine Bandbreite von 30 meV. Die Anregimpulsleistung beträgt 100 nW, die Abtastimpulsleistung 60 nW. Es werden Verzögerungszeiten im Bereich von -30 und 170 ps aufgenommen.

In den derart detektierten Spektren der Reflektivitätsänderung zeigen sich neben Reflektivitätsänderungen negativem Vorzeichen gleichzeitig Resonanzen, deren Vorzeichen positiv ist und für die keine PL-Emission detektiert wird (vgl. Abb. 6.2). Dabei fällt auf, dass die scharfen Resonanzen tendenziell vermehrt im hochenergetischen Bereich des Reflektivitätsänderungsspektrum auftreten, während im niederenergetischen Bereich nahezu keine Signatur mit positiver Reflektivitätsänderung beobachtet wird.

Abb. 6.21 (b) zeigt eine derartige Resonanz mit positiver Amplitude der Reflektivitätsänderung bei einer Verzögerungszeit von $\Delta t = 5$ ps. Die Resonanz besitzt eine Zentralenergie von 1.663 eV, die Linienform ist lorentzförmig mit einer monochromatorbegrenzten Linienbreite von 100 μ eV Abb. 6.21 (b).

Bei der Untersuchung der Dynamik dieser Resonanzen zeigt sich, dass in den detektierten Spektren zu jeder Resonanz positiver Amplitude eine Resonanz negativer Amplitude existiert, deren Signaldynamik sich zu positiven Verzögerungszeiten gleichen.

In Abb. 6.21 ist eine derartige Zuordnung dargestellt. Auffallend dabei ist, dass neben dem unterschiedlichen Vorzeichen der Reflektivitätsänderung für alle derart zugeordneten Resonanzen die Energie der Resonanz mit negativem Vorzeichen geringer ist, als die Energie für die Resonanz mit positivem Vorzeichen (Abb. 6.23 (a)). Die Energiedifferenz beträgt hierbei zwischen 0.5 meV und 1.5 meV und zeigt eine starke Abhängigkeit von der Detektionsenergie (vgl. Abb. 6.23 (c)). Während für Resonanzen geringer Eigenenergie eine Energiedifferenz ΔE von 1.5 meV beobachtet wird, nimmt ΔE mit Zunahme der

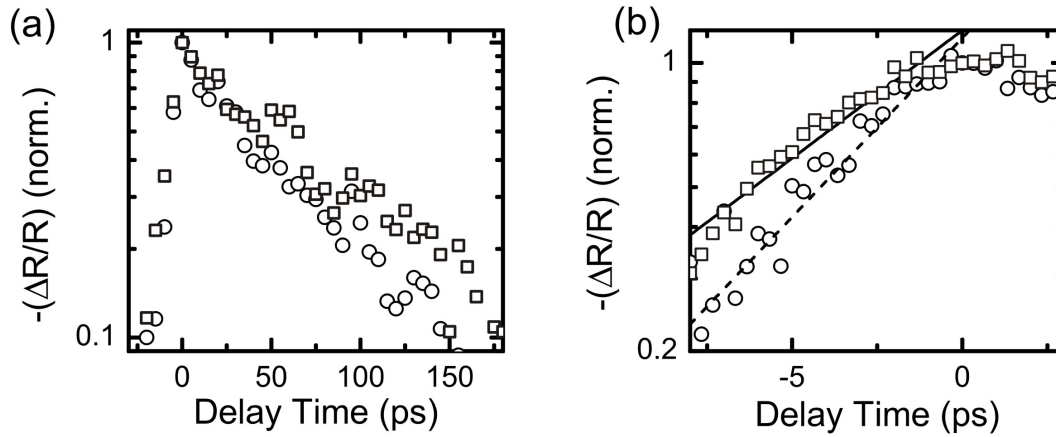


Abbildung 6.22: $\delta R/R$ in Abhängigkeit der Verzögerungszeit. Während beide Zustände eine ähnliche Lebensdauer aufweisen (a), ist der Abfall des hochenergetischen Signals zu negativen Verzögerungszeiten schneller (b). Die Abfallzeit beträgt $T_{corr} \simeq T_2/2$.

Resonanzenergie monoton ab. Für eine Detektionsenergie von 1.662 eV der Resonanz negativen Vorzeichens wird schliesslich eine Differenzenergie von 0.5 meV gefunden.

Betrachtet man die Dynamik der Reflektivitätsänderung bei Detektion auf der jeweiligen Resonanzenergie, wird die ähnliche Zerfallszeit für $\Delta t > 0$ deutlich (Abb. 6.22). Sie betragen für die in Abb. 6.21 dargestellten Resonanzen $T_1 \simeq 60$ ps.

Bei der Untersuchung der Reflektivitätsänderung zu negativen Verzögerungszeiten ist auffallend, dass bei den zugeordneten Zuständen zumeist ein erhöhter Abfall detektiert wird. Während für Resonanzen negativer Amplitude eine monochromatorauflösungsbegrenzte Dephasierungszeit zwischen $8 \text{ ps} \leq T_2 \leq 15 \text{ ps}$ gefunden wird, ist die Dephasierungszeit T_2^{corr} der zugeordneten Resonanz positiver Amplitude tendenziell verkürzt (Abb. 6.22 (b)). Die Dephasierungszeit beträgt je nach Exzitonenresonanz und der zugehörigen Zuordnung zwischen $0.5 T_2^{ex} \leq T_2^{corr} \leq T_2^{ex}$.

Abb. 6.22 (b) macht dies anhand der in Abb. 6.21 dargestellten Resonanz deutlich. Während die Dephasierungszeit der Resonanz negativer Amplitude mit 9 ps bestimmt werden kann, beträgt $T_2^{corr} = 6$ ps. Aufgrund der beobachteten Dynamik der Reflektivitätsänderung können Dipolmomente von über 120 D als Ursache dieser positiven Reflektivitätsänderung ausgeschlossen werden. Ein Dipolmoment über 120 D, das bei der eingesetzten Abtastimpulsleistung von 60 nW zu einer Impulsfläche $\Theta > \pi$ führt (vgl. Abs. 3.5.1), kann ebenfalls eine Vorzeichenumkehr der Reflektivitätsänderung verursachen. Allerdings weist ein derart hohes Dipolmoment nach Gln. 6.43 auf eine strahlende Lebensdauer $T_{rad} < 25$ ps hin. Dieser schnelle Abfall steht im Widerspruch zu der beobachteten Dynamik der Reflektivitätsänderung (vgl. Abb. 6.22 (a)), so dass das Dipolmoment als Ursache ausgeschlossen werden kann.

Die Dynamik der Reflektivitätsänderungen entspricht vielmehr genau den oben beschriebenen Erwartungen für ein gekoppeltes System aus exzitonerischer und biexzitonerischer optischer Anregung. Überraschend allerdings ist, dass die korrelierte Nichtlinearität zu höheren Energien verschoben ist. In der Regel zeigen die nichtlinearen optischen Spektren eine Rotverschiebung der biexzitonen Grundzustandsresonanz [Che02]. Die Energieverschiebung beträgt ungefähr 20–30% der Exzitonenbindungsenergie [Bir96], so dass für GaAs-Interface

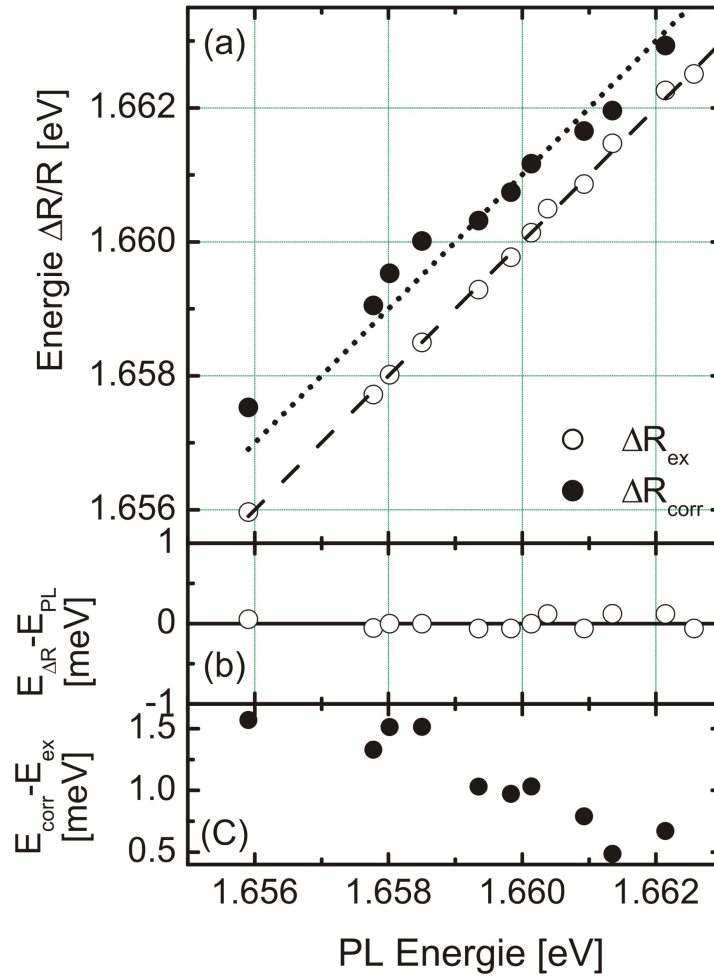


Abbildung 6.23: (a) Abhängigkeit der Energie der Reflektivitätsänderung ΔR des Exzitonenzustands und des korrelierten Zustands von der PL-Emissionsenergie. Während die ΔR der Exzitonenzustands stets isoenergetisch zu der PL-Emission ist (b), zeigen korrelierte hochenergetische Zustände einen Abfall der Differenzenergie mit Anstieg der PL-Emissionsenergie (c). Die Differenzenergie beträgt je nach Quantenpunkt 0.5–1.5 meV.

Quantenpunkte eine Energieverschiebung von ungefähr 3 meV beobachtet wird [Che02]. Untersuchungen mit Hilfe kohärenter Emissionsspektroskopie (CES) an dem untersuchten Quantenfilm legt ebenfalls die Rotverschiebung des Biexzitonengrundzustands nahe. So wurde an einem Subensemble von Quantenpunkten des Quantenfilms **D** bereits eine positive Biexzitonenzustandsenergie $\Delta E \approx 3$ meV beobachtet, so dass auch für die Mehrzahl der Quantenpunkte eine positive Bindungsenergie des Biexzitonengrundzustands erwartet wird [Fin02].

Die Quantenpunkte des untersuchten Quantenfilms **D** zeichnen sich durch einen schwachen Einschluss und grosse Ausdehnungen aus (vgl. Abs. 5.3, Abs. 6.5.2). Das Einschlusspotential beträgt ungefähr 9 meV und es konnten mit Hilfe der PL-Autokorrelationsspektroskopie (Abs. 5.3) und den Ergebnissen der fs-Nahfeldspektroskopie (Abs. 6.5.2) Quantenpunktdurchmesser von 45–50 nm bestimmt werden. Dies ist deutlich grösser als der Exziton Bohr radius $a_0 \simeq 13$ nm. Zudem wurden mit Hilfe der PL-Autokorrelationsspektroskopie lokalisierte

angeregte Zustände beobachtet. Die Energiedifferenz zwischen Exzitonengrundzustand und erstem angeregten optisch aktiven Zustand beträgt ungefähr 2.8 meV. Diese Bindungsenergie ist ähnlich zu der erwarteten Biexzitonенbindungsenergie. Für derartige Quantenpunkte legen theoretische Untersuchungen einen angeregten biexzitonischen Zustand nahe, der im Vergleich zur exzitonischen Resonanz blauverschoben ist und der den Hauptteil der biexzitonischen Oszillatorstärke trägt [Hu96, Nai97]. Dieses qualitative Bild, dass die beobachtete Nichtlinearität positiver Amplitude durch einen angeregten Biexzitonenzustand hervorgerufen wird, wird unterstützt durch erste Untersuchungen bei resonanter Anregung der exzitonischen Resonanz und breitbandiger Detektion der Reflektivitätsänderung [Uno02].

Die Dynamik des biexzitonischen Resonanz ist folglich gemäss den Erwartungen zu positiven Verzögerungszeiten durch den strahlenden Besetzungszustand des exzitonischen Zustands bestimmt. Zu negativen Verzögerungszeiten stellt eine direkte Messung der biexzitonischen Dephasierungszeit dar [Uno02]. Die Abfallzeit von $T_{2,B}$ der biexzitonischen Resonanz steht allerdings nicht im Einklang zu Experimenten, die kürzlich veröffentlicht wurden und ähnliche Exzitonен- und Biexzitonенdephasierungszeiten nahelegen [Che02]. In diesen Experimenten wurde die Untersuchung jedoch an biexzitonischen Grundzuständen durchgeführt. Für angeregte Biexzitonенresonanzen kann die biexzitonische Relaxation als zusätzlicher Dephasierungskanal dienen, was eine verkürzte Dephasierungszeit erklärt.

Zusammenfassend zeigt sich, dass mit der fs-Nahfeldmikroskopie neben der Untersuchung exzitonischer optischer Nichtlinearitäten auch die Beobachtung von korrelierten Zuständen möglich ist. Dies eröffnet den Weg zur experimentellen Demonstration bedingter Quanten-Bit Operationen an korrelierten Systemen. Weitere Untersuchungen insbesondere unter resonanter Anregung, die einen genaueren Aufschluss über die Art der optischen Nichtlinearität, die Bestimmung der Dynamik sowie die Demonstration bedingter Quanten-Bit Operationen geben, werden derzeit durchgeführt.

6.7 Zusammenfassung

Mit Hilfe der fs-Nahfeldspektroskopie war es erstmals möglich, das nichtlineare optische Signal einzelner lokalisierter Exzitonen in Quantenpunkten mit Femtosekunden-Zeitaufösung zu untersuchen. Insbesondere gelang es erstmals, direkten Einblick in die Lebensdauer- und Polarisationsdynamik in einzelnen Quantenpunkten zu gewinnen.

Die Detektion des nichtlinearen optischen Signals erfolgte in Reflexionsgeometrie. Dabei wurde gezielt die Interferenz zwischen dem von der Probenoberfläche reflektierten elektrischen Feld des Abtastimpulses und dem von einem einzelnen Quantenpunkt abgestrahlten Polarisationsfeld, welches durch den Abtastimpuls getrieben wird, zur Detektion genutzt.

Der Nachweis der Reflektivitätsänderung erfolgte spektral aufgelöst in Abhängigkeit der Verzögerungszeit Δt . Die Detektionsempfindlichkeit war dabei nahezu ausschliesslich durch Schrot-Rauschen limitiert.

Zur Durchführung der Experimente wurden als Modellsystem *Interface Quantenpunkte* in dünnen GaAs-Quantenfilmen in Reflexionsgeometrie untersucht. Das nichtlineare optische Signal einzelner Quantenpunkte konnte isoliert detektiert werden und die Dynamik der

Reflektivitätsänderung untersucht werden.

Dabei ist zu beachten, dass insbesondere die Tiefe, in der ein Quantenpunkt unter der Oberfläche vergraben ist, entscheidend die Form des nichtlinearen optischen Signals beeinflusst. Anhand der Bestimmung der Reflektivitätsänderung von Quantenfilmen unterschiedlicher Tiefe konnte diese Tiefenabhängigkeit demonstriert werden. Der Übergang von dispersiver zu lorentzförmiger (absorptiver) Reflektivitätsänderung steht dabei in guter Übereinstimmung mit theoretischen Erwartungen für ein einfaches auf zwei Dipolen basierendes Modell.

Für die weiteren zeitaufgelösten Untersuchungen wurde der Quantenfilm **D** gewählt, der 123 nm unter der Oberfläche vergraben ist. Für diese Tiefe werden lorentzförmige Reflektivitätsänderungen zu positiven Verzögerungszeiten beobachtet. Es konnte gezeigt werden, dass die Reflektivitätsänderung dieses Quantenfilms im Wesentlichen durch die Änderung des Imaginärteils der Polarisierung $\Delta R \propto \text{Im}(\Delta \tilde{P}(\omega))$ bestimmt ist.

An diesem Quantenfilm wurde die Dynamik der Reflektivitätsänderung einzelner lokalisierter Resonanzen untersucht. So wurden zu positiven und negativen Verzögerungszeiten nichtverschwindende Reflektivitätsänderungen beobachtet. Zu positiven Verzögerungszeiten ist das Spektrum der Reflektivitätsänderung lorentzförmig. Die Dynamik ist gekennzeichnet durch einen biexponentiellen Abfall. Zu negativen Verzögerungszeiten wird eine einfach exponentiell abfallende Reflektivitätsänderung gefunden. Das $\Delta R/R_0$ -Spektrum ist zu negativen Verzögerungszeiten gekennzeichnet durch spektral symmetrische Oszillationen, die auf die Energieposition maximaler Reflektivitätsänderung zentriert sind.

Über die Untersuchung der Dynamik der Reflektivitätsänderung zu späten positiven Verzögerungszeiten, sowie durch den Vergleich mit dem spektral integrierten Signal, konnte direkt die Lebensdauer einer Exzitonenbesetzung in einzelnen Quantenpunkten bestimmt werden. Dadurch konnte zusätzliche Information über die statistischen Eigenschaften von *Interface Quantenpunkten* in einem Quantenfilm gewonnen werden. Abschätzungen von Quantenpunktausdehnungen und die näherungsweise Bestimmung von Dipolmomenten sind möglich. Die beobachteten Lebensdauern von 20–165 ps weisen dabei auf Quantenpunktdurchmesser von 40 - 60 nm sowie auf Dipolmomente von 45–120 D hin.

Dabei zeigt sich relativ deutlich, dass gerade bei Exzitonen, die in Quantenpunkten mit relativ großer Ausdehnung lokalisiert sind, Ladungsträgerrelaxation nicht vernachlässigt werden darf. Ladungsträgerrelaxation erfolgt vorwiegend aus einem angeregten Zustand in den Grundzustand.

Die fs-Nahfeldspektroskopie bei spektral aufgelöster Detektion bietet vor allem auch die Möglichkeit, direkt die Polarisationsdynamik mit fs-Zeitauflösung zu untersuchen und $P(t)$ nahezu vollständig zu rekonstruieren. So konnten die nichtverschwindenden Signale zu negativen Zeiten detektiert werden, die direkt auf eine anregungsinduzierte Änderung der Polarisationsdynamik zurückzuführen sind. Mit Hilfe des beobachteten biexponentiellen Zerfalls zu positiven Verzögerungszeiten wurde die dominante Ursache in einem anregungsinduzierten Dephasieren bestimmt. Dabei führt die Anregung in hochenergetische quasi-Kontinuumszustände zu einem zeitlich erhöhten Abfall des vom Quantenpunkt emittierten elektromagnetischen Felds. Da eine Änderung der Oszillatorstärke aufgrund der Dynamik der Signale als Mechanismus ausgeschlossen werden kann, kann einzig das anregungsinduzierte Dephasieren zur dieser Erhöhung der Polarisationsdephasierungsrate und zu spektral symmetrischen Oszillationen führen. Die erhöhte Dephasierungszeit konnte über eine Modellbetrachtung zu (3 ± 1) ps bestimmt werden.

Der biexponentielle Zerfall auf den Transienten der Reflektivitätsänderung einzelner Quantenpunktresonanzen für $\Delta t > 0$ gibt weiterhin Einblick in die Ladungsträgerrelaxation, deren Zeitkonstante mit ungefähr (3 ± 1) ps bestimmt werden konnte. Der dominante Mechanismus, der zu dieser Ladungsträgerrelaxation führt, liess sich noch nicht eindeutig bestimmen. Allerdings wird der LO-Phononen-Streuung ein großer Einfluss zugeschrieben. Zur entgültigen Bestimmung der Ursache sind allerdings weitere Experimente notwendig, die unter systematischer Variation der experimentellen Parameter (Temperatur, Intensität, Überschussenergie) die Beiträge unterschiedlicher Streumechanismen zur Ladungsträgerrelaxation trennt.

Die Detektion eines anregungsinduzierten Dephasierens zeigt auf, dass einzelne Quantenpunktresonanzen äußerst empfindlich auf Änderungen der elektronischen Struktur der Umgebung reagieren. Sie können folglich gezielt für die Detektion von Änderungen der elektronischen Struktur der Umgebung eingesetzt werden. In den Experimenten dominiert die Kopplung an Kontinuumszustände. Eine Kopplung an benachbarte Quantenpunkteigenzustände wurde nicht beobachtet.

Die Detektion positiver Reflektivitätsänderungen legt Korrelationen zwischen Exzitonengrundzustand und Zuständen, die einen nichtlinearen Prozess benötigen, nahe. Derartige Zustände finden sich tendenziell im hochenergetischen Bereich des Spektrums der Reflektivitätsänderungen. Die „Lebensdauer“ der Zustände ist ähnlich zu den Lebensdauern der Zustände negativer Reflektivitätsänderung. Gleichzeitig zeigen sie eine Tendenz zu kürzeren Dephasierungszeiten, die erhärten, dass diese Zustände nur durch nichtlineare optische Prozesse angeregt werden können. Die wahrscheinliche Ursache für diese positiven Reflektivitätsänderungen ist ein angeregter biexzitonischer Zustand in diesen Quantenpunkten. An der entgültigen Klärung der physikalischen Ursache wird derzeit intensiv gearbeitet.

Kapitel 7

Schlussfolgerungen und Ausblick

7.1 Schlussfolgerungen

Im Verlaufe dieser Arbeit gelang es erstmals, die nichtlinearen optischen Eigenschaften eines einzelnen Halbleiterquantenpunkts isoliert zu detektieren und dessen Besetzungs- und Polarisations-Dynamik mit Femtosekunden-Zeitauflösung zu untersuchen.

Dieses Ziel konnte durch die Entwicklung einer neuartigen Methode — der fs-Nahfeldmikroskopie — erreicht werden. Dabei zeichnet sich fs-Nahfeldmikroskopie durch hohe räumliche (200 nm), zeitliche (300 fs) und spektrale Auflösung (60 μeV) aus und schöpft so die Möglichkeiten der optischen Spektroskopie nahezu aus.

Das für diese Experimente entwickelte fs-Nahfeldmikroskop bietet im Vergleich zu anderen, bislang eingesetzten, räumlich hochaufgelösten Methoden zwei entscheidende Vorteile:

- Die Nutzung geätzter, unbedampfter Nahfeldsonden bietet die Möglichkeit, Messungen in Reflexionsgeometrie mit höchster räumlich-optischer Auflösung durchführen zu können. Ein aufwendiges und für die Qualität der Struktur gefährliches Abätzen des Probensubstrats wird dadurch überflüssig.
- Die Implementation einer optischen Abstandsregelkontrolle unterdrückt vollständig mechanische Wechselwirkungen zwischen der Spitze und Probe.

Dementsprechend können Messungen durchgeführt werden, ohne dass die Qualität der Experimente vor und während der Durchführung negativ beeinflusst wird.

In den durchgeführten Experimenten konnte ein weitreichender Einblick in die statistischen Eigenschaften der unterschiedlichen Quantenfilme gewonnen werden. So konnten über PL- und Autokorrelationsexperimente die Art und Form des Unordnungspotentials analysiert werden.

Von besonderer Bedeutung hierfür war die Beobachtung eines charakteristischen scharfen Maximums in den Autokorrelationsspektren. Sie wurden angeregten Zuständen mit charakteristischen Energiepositionen zugeschrieben. Die Energiedifferenz zwischen Exzitonengrundzustand und angeregtem Zustand wurde ausgenutzt, um die Ausdehnung von Quantenpunkten zu bestimmen. So konnten Ausdehnungen von 45 nm berechnet werden, die Dipolmomente von 40–50 D nahelegen. Zusätzlich zu den langreichweitigen Monolagenfluktuationen existieren kurzreichweitige Potentialfluktuationen, die zu der

beobachteten inhomogenen Emissionslinienverbreiterung führen. Die Potentialamplitude dieser Fluktuationen konnte zu 2 meV abgeschätzt werden. Eine genauere Bestimmung dieser kurzreichweitigen Potentialfluktuationen konnte bislang noch nicht durchgeführt werden. Weitere Experimente, sowie theoretische Untersuchungen sind dazu notwendig.

Mit der Detektion des nichtlinearen optischen Signals bei 12 K können einzelne Quantenpunkte gezielt isoliert werden und deren Polarisations- und Rekombinationsdynamik mit fs-Zeitauflösung untersucht werden.

Die Form des Spektrums der Reflektivitätsänderung hängt dabei sehr stark von der Tiefe des Quantenfilms ab. Diese Tiefenabhängigkeit wurde anhand der Reflektivitätsänderung mehrerer Quantenfilme untersucht und analysiert. Dabei wurde in guter Übereinstimmung zu theoretischen Voraussagen der periodische Wechsel zwischen dispersiven und lorentzförmigen Spektren beobachtet.

Die Detektion der Lebensdauerdynamik unterschiedlicher Quantenpunkte ermöglicht eine Verifikation der stationären Eigenschaften. So gelang in guter Übereinstimmung hierzu die Bestimmung von Dipolmomenten der Übergänge, sowie der Abschätzung von Quantenpunktausdehnungen.

In derartigen Systemen spielen entgegen vieler Voraussagen Vielteilchenwechselwirkungen eine bedeutende Rolle. Gerade die nichtresonante Anregung bietet die Möglichkeit, diese gezielt zu untersuchen und zu quantifizieren. Vielteilchenwechselwirkung verursacht Ladungsträgerbesetzung in Kontinuumszuständen und verändert dadurch die Polarisationsdynamik einzelner Quantenpunkte.

In den Experimenten konnte als dominante Vielteilchenwechselwirkung ein anregungsinduziertes Dephasieren bestimmt werden. Sie führt zur Detektion nichtverschwindender Signale zu negativen, sowie der Detektion des biexponentiellen Signalabfalls zu positiven Verzögerungszeiten.

Gerade die Beobachtung einer erhöhten Dephasierung zeigt die Sensitivität einzelner Quantenpunkte auf Änderungen der elektronischen Struktur der Umgebung. Sie ermöglicht gerade bei nichtresonanter Anregung die Untersuchung der Polarisationsdynamik. Sie konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmals mit fs-Zeitauflösung untersucht werden.

7.2 Ausblick

Die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit zeigen die vielfältigen Einsatzmöglichkeiten der fs-Nahfeldmikroskopie. Neben der hohen räumlichen Auflösung zur Detektion einzelner 0D-Nanostrukturen bietet sie gleichzeitig auch die Möglichkeit der gezielten Variation der Anregefläche, wodurch Relaxations- und Transportmechanismen bei der Detektion getrennt werden können.

Gerade durch die Vielfältigkeit bietet die fs-Nahfeldmikroskopie Raum für zahlreiche weitere Untersuchungen. So sind zunächst weitere Experimente an der Mehrfachquantenfilmprobe wünschenswert, die ein tieferes Verständnis von deren charakteristische Eigenschaften ergeben sollen:

- Die Bestimmung der Dipolmomente erfolgte über die Annahme einer rein strahlenden Rekombination. Diese Beschreibung ist mit Sicherheit gerade für lokalisierte Exzitonzustände mit großen Übergangsenergien nicht vollständig. Ladungsträgerrelaxati-

on und die Streuung mit LA-Phononen führen zu Änderungen der Lebensdauer. Die direkte Beobachtung von Rabi-Oszillationen bei Abtastimpuls-intensitätsabhängigen Messungen zu negativen Verzögerungszeiten kann demgegenüber eine Untergrenze für Dipolmomente einzelner Quantenpunkte geben und ermöglicht so weiteren Einblick in deren Ausdehnung, sowie die statistischen Eigenschaften des untersuchten Quantenfilms.

- Der bei den Autokorrelationsexperimenten beobachtete angeregte Exzitonenzustand konnte bislang in den fs-Nahfeldexperimenten nicht hinreichend untersucht werden. So wäre eine gezielte Untersuchung der Besetzungsdynamik in diesen sinnvoll, um weiteren Aufschluss über die Art der PL-Erhöhung zu gewinnen.
- Die Signaldynamik eines einzelnen Quantenpunkts bei spektral aufgelöster Detektion wurde über ein anregungsinduziertes Dephasieren und einer zeitlichen Änderung der Besetzungsdichte erklärt. Nicht vollständig geklärt werden konnte allerdings der dominante Mechanismus für die Änderung der Besetzungsdichte. Hierzu bedarf es weiterer Experimente unter systematischer Variation der Parameter Temperatur, Anregungsdichte, Überschussenergie, sowie Anregefläche, um die Einflüsse der Streumechanismen auf Relaxation und Transport voneinander trennen und bestimmen zu können.
- Das Auftreten von positiven Reflektivitätsänderungen wurde korrelierten Zuständen zugeschrieben. Die Art der Korrelation konnte nicht aufgeklärt werden. Wahrscheinlich wird ein derartiges Signal durch einen angeregten biexzitonischen Zustand hervorgerufen. Ein weiterer Aufschluss über die Ursache hierfür sollte möglich sein, in dem man mit einem schmalbandigen Anregeimpuls resonant zu dem Exzitonengrundzustand eines lokalisierten Exzitons anregt. Dies sollte zur Ausbildung einer Absorptionslinie bei Detektion auf der Biexzitonенresonanzenergie führen. Die Anregung der Biexzitonенresonanz sollte ebenfalls zu einer Signatur auf der Exzitonенresonanz führen [Che02]. An diesen Experimenten wird derzeit gearbeitet.

Neben diesen wünschenswerten Experimenten bietet die fs-Nahfeld-Anrege-Abtast-Spektroskopie für die Zukunft eine Fülle von weiteren Anwendungsmöglichkeiten:

So bietet die Detektion der Absorption einzelner Quantenpunkte im Gegensatz zu PL-Emissionsspektroskopie die Möglichkeit, alle optisch aktiven Exzitonенresonanzen zu beobachten. Ein fundierter Einblick in die statistischen Eigenschaften ist möglich. Mit Hilfe einer Absorptions-Autokorrelationsspektroskopie könnten Aussagen über die statistische Verteilung der Dipolmomente, Lebensdauern und Ausdehnungen gegeben werden, die über die PL-Emission nur schwer zugänglich sind.

Ein weiterer Schritt zur Entwicklung eines Quantencomputers ist die Beobachtung der Reflektivitätsänderung unter Einsatz zweier phasengekoppelter Abtastimpulse. Phasengekoppelte Impulse ermöglichen die direkte Beobachtung der Polarisationsdynamik inklusive der relativen Phase.

Ein erstes Modellsystem für ein gekoppeltes System ist die Kopplung zwischen Exziton- und dem beobachteten korrelierten Zustand. Dazu ist es allerdings zunächst unerlässlich die Natur der Korrelation zu untersuchen. So sollten Experimente mit resonanter Anregung weiteren Aufschluss über die Art der Korrelation geben.

Schliesslich wird die Ausdehnung der Experimente auf $In_xGa_{1-x}As$ -Quantenpunktsysteme

sowie gekoppelte Quantenpunktsysteme auch in naher Zukunft noch eine interessante Herausforderung an die Experimentatoren stellen. Da die Dipolmomente dieser Systeme mit 10 D um einen Faktor 5 niedriger sind, werden Signalstärken erwartet, die um eine Größenordnung niedriger als die hier dargestellten sind. Deren Detektion ist bis heute immer noch an der Grenze des technisch Realisierbaren.

Literaturverzeichnis

- [Abb73] E. Abbe.
Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der Mikroskopischen Wahrnehmung.
Archiv Mikrosk. Anat. **9**, 413 (1873)
- [Ach99] M. Achermann, B. A. Nechay, F. Morier-Genoud, A. Schertel, U. Siegner und U. Keller.
Direct experimental observation of different diffusive transport regimes in semiconductor nanostructures.
Phys. Rev. B **60**, 2101 (1999)
- [Ach01] M. Achermann.
Ultrafast goes local.
Dissertation, ETH Zürich (2001)
- [All92] P. V. Allmen.
Electron-electron interaction and intersubband absorption coefficient in a GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum well.
Phys. Rev. B **46**, 13351 (1992)
- [And58] P. W. Anderson.
Absence of Diffusion in Certain Random Lattices.
Phys. Rev. **109**, 1492 (1958)
- [And99] L. C. Andreani, G. Panzarini und J.-M. Gérard.
Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory.
Phys. Rev. B **60**, 13276 (1999)
- [Ara82] Y. Arakawa und H. Sakaki.
App. Phys. Lett. **40**, 939 (1982)
- [Asa93] M. T. Asaki, C.-P. Huang, D. Garvey, J. Zhou, H. C. Kapteyn und M. M. Murnane.
Generation of 11-fs pulses from a self-mode-locked Ti:sapphire laser.
Opt. Lett. **18**, 977 (1993)
- [Ash91] S. H. Ashworth, M. Joschko, M. Woerner, E. Riedle und T. Elsaesser.
Regeneratively initiated self-mode-locked Ti:sapphire laser.
Opt. Lett. **20**, 2120 (1991)
- [Bac99] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V. D. Kulakovskii, N. A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel.
Biexciton versus Exciton Lifetime in a Single Semiconductor Quantum Dot.
Phys. Rev. Lett. **83**, 4417 (1999)

- [Bas88] G. Bastard.
Wave mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures.
1. Auflage (Les Editions de Physique, Les Ulis, 1988)
- [Bas91] P. K. Basu und P. Ray.
Calculation of the mobility of two-dimensional excitons in a GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum well.
Phys. Rev. B **44**, 1844 (1991)
- [Bay02] M. Bayer und A. Forchel.
Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In_{0.60}Ga_{0.40}As/GaAs self-assembled quantum dots.
Phys. Rev. B **65**, 041308 (2002)
- [Bec01] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoglu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang und E. Hu.
Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot.
Phys. Rev. B **63**, R121312 (2001)
- [Beh97] G. Behme, A. Richter, M. Süptitz und Ch. Lienau.
Vacuum near-field scanning optical microscope for variable cryogenic temperatures.
Rev. Sci. Inst. **68**, 3458 (1997)
- [Ben91] D. Bennhardt, P. Thomas, A. Weller, M. Lindberg und S.W. Koch.
Influence of Coulomb interaction on the photon echo in disordered semiconductors.
Phys. Rev. B **43**, 8934–8945 (1991)
- [Bet44] H.A. Bethe.
Theory of Diffraction by Small Holes.
Phys. Rev. **66**, 163 (1944)
- [Bet91] E. Betzig, J. K. Trautmann, T. D. Harris, J. S. Weiner und R. L. Kostelak.
Breaking the diffraction barrier: Optical microscopy on a nanometric scale.
Science **251**, 1468 (1991)
- [Bet93] E. Betzig und P. L. Chichester.
Single molecules observed by near-field scanning optical microscopy.
Science **262**, 1422 (1993)
- [Bim86] D. Bimberg, D. Mars, J. N. Miller, R. K. Bauer und D. Oertel.
J. Vac. Sci. Technol. B **4**, 1014 (1986)
- [Bim99] D. Bimberg, M. Grundmann und N. Ledentsov.
Quantum Dot Heterostructures.
2. Auflage (John Wiley & Sons, Chichester, 1999)
- [Bin92] R. Binder, D. Scott, A. E. Paul, M. Lindberg, K. Henneberger und S. W. Koch.
Carrier-carrier scattering and optical dephasing in highly excited semiconductors.
Physical Review B **45**, 1107 (1992)
- [Bio00] Eliana Biolatti, Rita C. Iotti, Paolo Zanardi und Fausto Rossi.
Quantum Information Processing with Semiconductor Macroatoms.

- Phys. Rev. Lett. **85**, 5647 (2000)
- [Bir96] D. Birkedal, J. Singh, V. G. Lyssenko, J. Erland und J. V. Hvam.
Binding of Quasi-Two-Dimensional Biexcitons.
Phys. Rev. Lett. **76**, 672 (1996)
- [Bir01] D. Birkedal, K. Leosson und J. M. Hvam.
Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots.
Phys. Rev. Lett. **87**, 227401 (2001)
- [Blu89] K. Blum.
Density Matrix Theory and Applications.
1. Auflage (Plenum Press, New York, 1989)
- [Boc90] U. Bockelmann und G. Bastard.
Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases.
Phys. Rev. B **42**, 8947 (1990)
- [Boc93] U. Bockelmann.
Exciton relaxation and radiative recombination in semiconductor quantum dots.
Phys. Rev. B **48**, 17637 (1993)
- [Boc97] U. Bockelmann, W. Heller, A. Filoramo und Ph. Roussignol.
Microphotoluminescence studies of single quantum dots. I. Time-resolved experiments.
Phys. Rev. B **55**, 4456 (1997)
- [Bon98a] N. H. Bonadeo, Gang Chen, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park und D. G. Steel.
Nonlinear Nano-Optics: Probing One Exciton at a Time.
Phys. Rev. Lett. **81**, 2759 (1998)
- [Bon98b] N. H. Bonadeo, J. Erland, D. Gammon, D. Park, D. S. Katzer und D. G. Steel.
Coherent Optical Control of the Quantum State of a Single Quantum Dot.
Science **282**, 1473 (1998)
- [Bon00] N. H. Bonadeo, Gang Chen, D. Gammon und D. G. Steel.
Single Quantum Dot Nonlinear Optical Spectroscopy.
Phys. Stat. Sol. B **221**, 5 (2000)
- [Bor01] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg.
Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots.
Phys. Rev. Lett. **87**, 157401 (2001)
- [Bor02] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg.
Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots.
Phys. Rev. B **66**, R081306 (2002)
- [Bou50a] C. J. Bouwkamp.
Phil. Res. Rep. **5**, 321 (1950)
- [Bou50b] C. J. Bouwkamp.
On the diffraction of electromagnetic waves by small circular disks and holes.

- Phil. Res. Rep. **5**, 401 (1950)
- [Bru92] K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm, G. Tränkle und G. Weimann.
Photoluminescence from a single GaAs/AlGaAs quantum dot.
Phys. Rev. Lett. **69** (22), 3216 (1992)
- [Bru94] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle und G. Weinmann.
Sharp-line Photoluminescence and Two-Photon Absorption of Zero-Dimensional Biexcitons in a GaAs/AlGaAs Structure.
Phys. Rev. Lett. **73**, 1138 (1994)
- [Car94] N. Carlsson, W. Seifert, A. Petersson, Castrillo P, M. E. Pistol und L. Samuelson.
App. Phys. Lett. **65**, 3093 (1994)
- [Cas98] H. Castella und John W. Wilkins.
Splitting of the excitonic peak in quantum wells with interfacial roughness.
Phys. Rev. B **58**, 16186 (1998)
- [Che86] D. S. Chemla.
Introduction to the special issue on physics and applications of semiconductor quantum-well structures.
IEEE J. Quant Electr.: Special issue on semiconductor quantum wells and superlattices **QE-22**, 1609 (1986)
- [Che02] Gang Chen, T. H. Stievater, E. T. Batteh, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park und L. J. Sham.
Biexciton Quantum Coherence in a Single Quantum Dot.
Phys. Rev. Lett. **88**, 117901 (2002)
- [Cho94] Weng W. Chow, S. W. Koch und M. SargentIII.
Semiconductor- Laser Physics.
1. Auflage (Springer-Verlag, Berlin, 1994)
- [Chr90] J. Christen und D. Bimberg.
Line shapes of Intersubband and Excitonic recombination in quantum wells. Influence of final-state interaction, statistical broadening, and momentum conservation.
Phys. Rev. B **42**, 7213 (1990)
- [Cit93] D. S. Citrin.
Radiative lifetimes of excitons in quantum wells: Localization and phase-coherence effects.
Phys. Rev. B **47**, 3832 (1993)
- [Cor96] T. R. Corle und G. S. Kino.
Confocal scanning optical microscopy.
3. Auflage (Academic Press, 1996)
- [Cun96] S. T. Cundiff, M. Koch, W. H. Knox, J. Shah und W. Stolz.
Optical Coherence in Semiconductors: Strong Emission Mediated by Nondegenerate Interactions.
Phys. Rev. Lett. **77**, 1107 (1996)

- [Cur93] P. F. Curley, Ch. Spielmann, T. Brabec, F. Krausz, E. Wintner und A. J. Schmidt.
Operation of a femtosecond Ti:sapphire solitary laser in the vicinity of zero group-delay dispersion.
Opt. Lett. **18**, 54 (1993)
- [Dam90] T. C. Damen, J. Shah, D. Y. Oberli, D. S. Chemla, J. E. Cunningham und J. M. Kuo.
Dynamics of exciton formation and relaxation in GaAs quantum wells.
Phys. Rev. B **42**, 7434 (1990)
- [Dav86] R. David, K. Kern, P. Zeppenfeld und G. Comsa.
High-resolution He-scattering apparatus for gas-surface interaction studies.
Rev. Sci. Inst. **57**, 2771 (1986)
- [Dav98] S. Davy, M. Spajer und D. Courjon.
Influence of the water layer on the shear force damping in near-field microscopy.
App. Phys. Lett. **73**, 2594 (1998)
- [Dem91] Wolfgang Demtröder.
Laserspektroskopie.
2 Auflage (Springer, Berlin, 1991)
- [Der00] A. Dereux, C. Girard und J.-C. Weeber.
Theoretical principles of near-field optical microscopies and spectroscopies.
J. Chem. Phys. **112**, 7775 (2000)
- [Die96] J. C. Diels und W. Rudolph.
Ultrashort Laser Pulse Phenomena.
2 Auflage (Academic Press, San Diego, 1996)
- [Dom87] W. Domcke und H. Köppel.
Model calculation on the pump-probe measurement of ultrafast electronic population decay in polyatomic molecules.
Chem. Phys. Lett. **140**, 133 (1987)
- [Dua82] F. J. Duarte und J. A. Piper.
Dispersion Theory of Multiple-Prism Beam Expanders for Pulsed Dye-Lasers.
Optics Communications **43**, 303 (1982)
- [Dur99] Y. Durand, J. C. Woehl, B. Villerobe, W. Göhde und M. Orrit.
New design of a cryostat-mounted scanning near-field optical microscope for single molecule spectroscopy.
Rev. Sci. Inst. **70**, 1318 (1999)
- [Dzy95] A. B. Dzyubenko und G. E. W. Bauer.
Low-temperature transport of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells.
Phys. Rev. B **51**, 14524 (1995)
- [Ebi99] Y. Ebiko, S. Muto, D. Suzuki, S. Itoh, H. Yamakoshi, K. Shiramine, T. Haga, K. Unno und M. Ikeda.
Scaling properties of InAs/GaAs self-assembled quantum dots.
Phys. Rev. B **60**, 8234 (1999)

- [Eli00] P. G. Eliseev, H. Li, G. T. Liu, T. C. Newell, K. J. Malloy und L. F. Lester.
Transition dipole moment of InAs/InGaAs quantum dots from experiments on ultralow-threshold laser diodes.
App. Phys. Lett. **77**, 262 (2000)
- [Ell57] R. J. Elliot.
Intensity of Optical Absorption by Excitons.
Phys. Rev. **108**, 1384 (1957)
- [Emi00] V. Emiliani, T. Guenther, Ch.Lienau, R. Nötzel und K. H. Ploog.
Ultrafast near-field spectroscopy of quasi-one-dimensional transport in a single quantum wire.
Phys. Rev. B **61**, R10583 (2000)
- [Emi01a] V. Emiliani, T. Guenther, F. Intonti, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel und K. H. Ploog.
Femtosecond near-field spectroscopy: Carrier relaxation and transport in single quantum wires.
J. Microsc. **202**, 229 (2001)
- [Emi01b] V. Emiliani, F. Intonti, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel und K. H. Ploog.
Near-field optical imaging and spectroscopy of coupled quantum wire-dot structures.
Phys. Rev. B **64**, 155316 (2001)
- [Esh00] Soheyla Eshlaghi.
GaAs/Al_xGa_{1-x}As Quantentöpfe: MBE-Wachstum, Charakterisierung und laterale Modulation mittels fokussierter Ionenstrahlung.
Dissertation, Ruhr-Universität Bochum, Bochum (2000)
- [Fin00] F. Findeis, A. Zrenner, G. Böhm und G. Abstreiter.
Phonon-assisted biexciton generation in a single quantum dot.
Phys. Rev. B **61**, R10579 (2000)
- [Fin02] E. Finger.
Persönliche Mitteilung (2002)
- [Flu87] B. Fluegel, N.Peyghambarian, G. Olbright, M. Lindberg, S. W. Koch, M. Joffre, D. Hulin, A. Migus und A. Antonetti.
Femtosecond Studies of Coherent Transitions in Semiconductors.
Phys. Rev. Lett. **59**, 2588 (1987)
- [For84] R. L. Fork, O.E. Martinez und J. P. Jordan.
Negative dispersion compensation using pairs of prisms.
Opt. Lett. **9**, 150–152 (1984)
- [Fre00] G. von Freymann, E. Kurtz, C. Klingshirn und M. Wegener.
App. Phys. Lett. **77**, 394 (2000)
- [Fre01a] G. von Freymann, E. Kurtz, C. Klingshirn, D. Litvinov, D. Gerthsen, T. Schimmel und M. Wegener.
J. Microscopy **202**, 218 (2001)

- [Fre01b] Georg von Freymann.
Der Einfluß von Unordnung auf die Energieniveaustatistik von Exzitonen in Halbleitern.
Dissertation, Universität Karlsruhe (TH) (2001)
- [Gam95a] D. Gammon, S. Rudin, T. L. Reinecke, D. S. Katzer und C. S. Kyono.
Phonon broadening of excitons in GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs-quantum wells.
Phys. Rev. B **51**, 16785 (1995)
- [Gam95b] D. Gammon, E. S. Snow und D. S. Katzer.
Excited state spectroscopy of excitons in single quantum dots.
App. Phys. Lett. **67**, 2391 (1995)
- [Gam96a] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer und D. Park.
Optically Induced Entanglement of Excitons in a Single Quantum Dot.
Science **273**, 87 (1996)
- [Gam96b] D. Gammon, E. S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer und D. Park.
Fine structure splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots.
Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996)
- [Gha95] H. Ghaemi, C. Cates und B. B. Goldberg.
Ultramicroscopy **57**, 165 (1995)
- [Gin99a] F. Gindele, K. Hild, W. Langbein und U. Woggon.
Phonon interaction of single excitons and biexcitons.
Phys. Rev. B **60** (4), R2157 (1999)
- [Gin99b] F. Gindele, U. Woggon, W. Langbein, J. M. Hvam, K. Leonardi, D. Hommel und H. Selke.
Excitons, biexcitons, and phonons in ultrathin CdSe/ZnSe quantum structures.
Phys. Rev. B **60** (12), 8773 (1999)
- [Gla02] M. Glanemann und T. Kuhn.
Persönliche Mitteilung (2002)
- [Gö97] W. Göhde, J. Trittel, T. Brauchle, U. C. Fischer und H. Fuchs.
A low-temperature scanning confocal and near-field optical microscope.
Rev. Sci. Inst. **68**, 2466 (1997)
- [Goo47] F. Goos und H. Hähnchen.
A new and fundamental experiment on total reflection.
Ann. Phys. **6**, 333 (1947)
- [Gre82] W. Greiner.
Theoretische Physik, Band 3: Klassische Elektrodynamik.
3. Auflage (Harry Deutsch, Frankfurt, 1982)
- [Gre96] M. J. Gregor, P. G. Blome, J. Schöfer und R. G. Ulbrich.
App. Phys. Lett. **68**, 307 (1996)
- [Gro94] R. Grober, T. D. Harris, J. K. Trautmann und E. Betzig.
Design and implementation of a low temperature near-field scanning optical microscope.
Rev. Sci. Inst. **65**, 626 (1994)

- [Gro96] R. D. Grober, T. Rutherford und T. D. Harris.
A Modal Approximation for the Electro-magnetic Field of a Near-Field Optical Probe.
Appl. Opt. **35**, 3488 (1996)
- [Gru97] M. Grundmann und D. Bimberg.
Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 4181 (1997)
- [Gue99] T. Guenther, V. Emiliani, F. Intonti, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel und K. H. Ploog.
Femtosecond near-field spectroscopy of a single GaAs quantum wire.
App. Phys. Lett. **75**, 3500 (1999)
- [Gue00] J. R. Guest, T. H. Stievater, D. G. Steel, D. S. Katzer und D. Park.
QELS, OSA Technical Digest (2000)
- [Gue02] J. R. Guest, T. H. Stievater, X. Li, J. Chen, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Ell, A. Thränhardt, G. Khitrova und H. M. Gibbs.
Measurement of optical absorption by a single quantum dot exciton.
Phys. Rev. B **65**, R241310 (2002)
- [Guh90] S. A. Guha, A. Madhukar und K. C. Rajkumar.
App. Phys. Lett. **57**, 2110 (1990)
- [Hae82] C. Van Haesendonck, L. Van den dries, Y. Bruynseraede und G. Deutscher.
Localization and negative magnetoresistance in thin copper films.
Phys. Rev. B **25**, 5090 (1982)
- [Hak89] H. Haken.
Quantenfeldtheorie des Festkörpers.
1. Auflage (Teubner, Stuttgart, 1989)
- [Ham95] P. Hamm.
Coherent Effects in Infrared Spectroscopy.
Chem. Phys. **200**, 415 (1995)
- [Ham99] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzele, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Le-maître und J. M. Gérard.
Line narrowing in single semiconductor quantum dots: Toward the control of environment effects.
Phys. Rev. Lett. **83**, 4152 (1999)
- [Han97] B. Hanewinkel, A. Knorr, P. Thomas und S. W. Koch.
Optical near-field response of semiconductor quantum dots.
Phys. Rev. B **55**, 13715 (1997)
- [Har96] R. Harel, E. Cohen, E. Linder, Arza Ron und L. N. Pfeiffer.
Absolute transmission, reflection, and absorption studies in GaAs/AlAs quantum wells containing a photoexcited electron gas.
Phys. Rev. B **53** (12), 7868 (1996)
- [Has96] Tom Hasche.
Untersuchung ultraschneller Relaxationsprozesse großer Moleküle in Lösung auf der 20 fs Zeitskala.

- Dissertation, HU Berlin (1996)
- [Hau84] H. Haug und S. Schmitt-Rink.
Prog. Quant. Electr. **9**, 3 (1984)
- [Hau96] H. Haug und A. P. Jauho.
Quantum kinetics in transport and optics of semiconductors, (Springer, Berlin, 1996)
- [Hau98] H. Haug und S. W. Koch.
Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors.
3. Auflage (World Scientific Publishing, New York, 1998)
- [Haw00] P. Hawrylak, G. A. Narvaez, M. Bayer und A. Forchel.
Excitonic Absorption in a Quantum Dot.
Phys. Rev. Lett. **85** (2), 389 (2000)
- [Hec90] E. Hecht.
Optics.
2. Auflage (Academic Press, San Diego, 1990)
- [Heg82] J. Hegarty, M. D. Sturge, C. Weisbuch, A. C. Gossard und W. Wiegmann.
Resonant Rayleigh Scattering from an Inhomogeneously Broadened Transition: A new Probe of the Homogeneous Linewidth.
Phys. Rev. Lett. **49**, 930 (1982)
- [Heg84] J. Hegarty, L. Goldner und M. D. Sturge.
Localized and deocalized two-dimensional excitons in Gaas-AlGaAs multiple-quantum-well structures.
Phys. Rev. B **30**, 7346 (1984)
- [Hei97] R. Heitz, M. veit, N. N Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev und Zh. I. Alferov.
Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/gaAs quantum dots.
Phys. Rev. B **56**, 10435 (1997)
- [Her85] J. P. Heritage, A. M. Weiner und R. N. Thurston.
Picosecond pulse shaping by spectral phase and amplitude modulation.
Opt. Lett. **10**, 609–611 (1985)
- [Hes94] H.F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer und K. W. West.
Near-field Spectroscopy of the Quantum Constituents of a Luminescent System.
Science **264**, 1740 (1994)
- [Het01a] J. Hetzler, M. Wegener, G. Khitrova und H. M. Gibbs.
How non-invasive are metal nano-apertures on a semiconductor quantum well.
QELS 2001: Technical Digest 50 (2001)
- [Het01b] Jochen Hetzler.
Optische Nanoaperturen zur Untersuchung der raumzeitlichen Ladungsträgerdynamik im Halbleiter Galliumarsenid.
Dissertation, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe (2001)
- [Hil89] H. Hillmer, A. Forchel, S. Hansmann, Morohashi, E. Lopez, H. P. Meier und K. H. Ploog.

- Optical investigations of the mobility of two-dimensional excitons in GaAs/Ga_{1-x}As_x quantum wells.*
Phys. Rev. B **39**, 10901 (1989)
- [Hil99] C. J. Hill, P. M. Bridger, G. S. Picus und T. C. McGill.
Scanning apertureless microscopy below the diffraction limit: Comparisons between theory and experiment.
App. Phys. Lett. **75**, 4022 (1999)
- [Hon89] A. Honold, L. Schultheis, J. Kuhl und C. W. Tu.
Collision broadening of two-dimensional excitons in a GaAs single quantum well.
Phys. Rev. B **40**, 6442 (1989)
- [Hu96] Y. Z. Hu, M. Lindberg und S. W. Koch.
Theory of optically excited intrinsic semiconductor quantum dots.
Phys. Rev. B **42**, 1713 (1996)
- [Iba90] H. Ibach und H. Lüth.
Solid-State Physics.
3 Auflage (Springer, Berlin, 1990)
- [Ino92] T. Inoshita und H. Sakaki.
Electron relaxation in a quantum dot: Significance of multiphonon processes.
Phys. Rev. B **46**, 7260 (1992)
- [Int00] F. Intonti, V. Emiliani, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel und K. H. Ploog.
Low temperature near-field luminescence studies of localized and delocalized excitons in quantum wires.
J. Microsc. **202** (Pt.1), 193 (2000)
- [Int01] F. Intonti, V. Emiliani, C. Lienau, T. Elsaesser, V. Savona, E. Runge, R. Zimmermann, R. Nötzel und K. H. Ploog.
Quantum mechanical level repulsion of Excitonic levels in a Disordered Quantum Well.
Phys. Rev. Lett. **87**, 076801 (2001)
- [Int02] Francesca Intonti.
Near-field optical spectroscopy of disorder in semiconductor nanostructures.
Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, Berlin (2002)
- [Ivc94] E. L. Ivchenko, A. I. Nesvzhskii und S. Jords.
phys. sol. state **36**, 1156 (1994)
- [Jac98] J. D. Jackson.
Classical Electrodynamics.
3. Auflage (Wiley, New York, 1998)
- [Jah96a] U. Jahn, S. H. Kwok, M. Ramsteiner, R. Hey, H. T. Grahn und E. Runge.
Exciton localization, photoluminescence spectra, and interface roughness in thin quantum wells.
Phys. Rev. B **54** (4), 2733 (1996)
- [Jah96b] F. Jahnke, M. Kira, S. W. Koch, G. Khitrova, E. K. Lindmark, T. R. Nelson, Jr., D. V. Wick, J. D. Berger, O. Lyngnes, H. M. Gibbs und K. Tai.

- Excitonic Nonlinearities of Semiconductor Microcavities in the Nonperturbative Regime.*
Phys. Rev. Lett. **77**, 5257 (1996)
- [Jia92] S. Jiang, H. Ohsawa, K. Jamada, T. Pangaribuan, M. Ohtsu, K. Imai und A. Ikai.
Jap. J. of Appl. Phys. **31**, 2268 (1992)
- [Jof88] M. Joffre, D. Hulin und A. Migus, A. Antonetti, C. Benoit à la Guillaume, N. Peyghambarian, M. Lindberg und S. W. Koch.
Coherent effects in pump-probe spectroscopy of excitons.
Opt. Lett. **13**, 276 (1988)
- [Jos98] M. Joschko.
Ultraschnelle Dynamik von kohärenten Intervallenzbandpolarisationen in GaAs.
Dissertation, Humboldt Universität zu Berlin (1998)
- [Kai01] R. A. Kaindl, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, R. Hey und K. H. Ploog.
Homogeneous broadening and excitation-induced dephasing of intersubband transitions in a quasi two-dimensional electron gas.
Phys. Rev. B **63**, R161308 (2001)
- [Kam01] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara und H. Ando.
Exciton Rabi Oscillation in a Single Quantum Dot.
Phys. Rev. Lett. **87**, 246401 (2001)
- [Kam02] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel und J. M. Gérard.
Line narrowing in single semiconductor quantum dots: Toward the control of environment effects.
Phys. Rev. B **66**, R041306 (2002)
- [Kan96] Michael G. Kane.
Nonequilibrium carrier-carrier scattering in two-dimensional carrier systems.
Phys. Rev. B **54**, 16345 (1996)
- [Kar95] K. Karrai und R. D. Grober.
Piezoelectric tip-sample distance control for near-field optical microscopes.
App. Phys. Lett. **66**, 1842 (1995)
- [Kar00] Khaled Karrai und Ingo Tiemann.
Interfacial shear force microscopy.
Phys. Rev. B **62**, 13174 (2000)
- [Kas85] J. A. Kash, J. C. Tsang und J. V. Hvam.
Subpicosecond Time-Resolved Raman Spectroscopy of LO Phonons in GaAs.
Phys. Rev. Lett. **54**, 2151 (1985)
- [Kas93] J. A. Kash.
Carrier-carrier scattering: An experimental comparison of bulk GaAs and GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells.
Phys. Rev. B **48**, 18336 (1993)
- [Küh01] S. Kühn, C. Hettich, C. Schmitt, J-Ph. Poizat und V. Sandoghar.

- Diamond colour centres as a nanoscopic light source for scanning near-field microscopy.*
 Jour. Microsc. **202**, 2 (2001)
- [Kla01a] T. A. Klar, M. Dyba und S. W. Hell.
Stimulated emission depletion microscopy with an offset depleting beam.
 App. Phys. Lett. **78**, 393 (2001)
- [Kla01b] T. A. Klar, E. Engel und S. W. Hell.
Breaking Abbe's diffraction resolution limit in fluorescence microscopy with stimulated emission depletion beams of various shapes.
 Phys. Rev. E **64**, 066613 (2001)
- [Kle98] M. V. Klein und T. E. Furtak.
Optik.
 2 Auflage (Springer, Berlin, 1998)
- [Kli96] C. F. Klingshirn.
Semiconductor Optics.
 1. Auflage (Springer, Berlin, 1996)
- [Kno63] R. S. Knox.
Theory of Excitons (Academic Press, New York, 1963)
- [Kno89] W. H. Knox, D. S. Chemla, D. A. B Miller, J. B. Stark und S. Schmitt-Rink.
Femtosecond ac Stark effect in Semiconductor Quantum Wells: Extreme Low- and High-Intensity Limits.
 Phys. Rev. Lett. **62**, 1189 (1989)
- [Koc88] S. W. Koch, N. Peyghambarian und M. Lindberg.
Transient and steady-state optical non-linearities in semiconductors.
 J. Phys. C: Solid State Phys. **21**, 5229 (1988)
- [Kra93] B. Kramer und A. MacKinnon.
Absence of Diffusion in Certain Random Lattices.
 Rep. Prog. Phys **56**, 1469 (1993)
- [Lam98] P. Lambelet, A. Sayah, M. Pfeiffer, C. Psilipona und Marquis-Weible.
 Appl. Opt. **37**, 7289 (1998)
- [Lee85] P. A. Lee und T. V. Ramakrishnan.
Disordered electronic systems.
 Rev. Mod. Phys. **57**, 287 (1985)
- [Leo00] K. Leosson, J. R. Jensen, W. Langbein und J. M. Hvam.
Exciton localization and interface roughness in growth interrupted GaAs/AlAs quantum wells.
 Phys. Rev. B **61**, 10322 (2000)
- [Lev96] J. Levy, V. Nikitin, J. M. Kikkawa, A. Cohen, N. Samarth, R. Garcia und D. D. Awschalom.
Spatiotemporal Near-Field Spin Microscopy in Patterned Magnetic Heterostructures.
 Phys. Rev. Lett. **76**, 1948 (1996)

- [Lew84] A. Lewis, M. Isaacson, A. Harootunian und A. Murray.
Ultramicroscopy **13**, 227 (1984)
- [Lin88a] M. Lindberg und S. W. Koch.
Transient oscillations and dynamic Stark effect in semiconductors.
Phys. Rev. B **38**, 7607 (1988)
- [Lin88b] M. Lindberg und S.W. Koch.
Effective Bloch equations for semiconductors.
Physical Review B **38**, 3342–3350 (1988)
- [Lin92] M. Lindberg, R. Binder und S.W. Koch.
Theory of the photon echo.
Phys. Rev. A **45**, 1865 (1992)
- [Mac81] A. MacKinnon und B. Kramer.
One-Parameter Scaling of Localization Length and Conductance in Disordered Systems.
Phys. Rev. Lett. **47**, 1546 (1981)
- [Man95] L. Mandel und E. Wolf.
Optical Coherence and Quantum Optics (Cambridge University Press, Cambridge, 1995)
- [Mar87] O. E. Martinez.
3000-times grating compressor with positive group velocity dispersion.
IEE J. Quant. Electr. **23**, 59–64 (1987)
- [Mar98] M. V. Marquezini, J. Tignon und D. S. Chemla.
Refractive index and absorption of GaAs quantum wells across excitonic resonances.
App. Phys. Lett. **73**, 2313 (1998)
- [Mat02] K. Matsuda, T. Saiki, S. Nomura, M. Mihara und Y. Aoyagi.
Near-field photoluminescence imaging of single semiconductor quantum constituents with a spatial resolution of 30 nm.
App. Phys. Lett. **81**, 2291 (2002)
- [Mey91] P. Meystre und M. Sargent III.
Elements of Quantum Optics (Springer Verlag, Berlin, 1991)
- [Mic00] J. Michaelis, C. Hettich, J. Mlynek und V. Sandoghdar.
Optical microscopy using a single-molecule light source.
Nature **405**, 325 (2000)
- [Mil85] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood und C. A. Burrus.
Electric field dependence of optical absorption near the band gap of quantum-well structures.
Phys. Rev. B **32**, 1043 (1985)
- [Mül00] R. Müller und C. Lienau.
Propagation of femtosecond optical pulses through uncoated and metal-coated near-field fiber probes.

- App. Phys. Lett. **76**, 3367 (2000)
- [Mül02a] K. Müller und Ch. Lienau.
ac-Stark Effect of single quantum dots (2002).
To be published
- [Mül02b] R. Müller und C. Lienau.
Three-dimensional analysis of light propagation through uncoated near-field fibre tips.
J. Microsc. **202**, 339 (2002)
- [Mo90] Y.-W. Mo, D. E. Savage, B. S. Swartzentruber und M. G. Lagally.
Phys. Rev. Lett. **65**, 1020 (1990)
- [Muk95] Shaul Mukamel.
Principles of nonlinear optical spectroscopy.
1. Auflage (Oxford University Press, New York, 1995)
- [Mys86] A. Mysyrowicz, D. Hulin, A. Antonetti, A. Migus, W. T. Masselink und H. Morokoc.
Dressed Excitons in a Multiple Quantum Well Structure: Evidence for an Optical Stark Effect with Femtosecond Response Time.
Phys. Rev. Lett. **56**, 2748 (1986)
- [Nai97] S. Nair und T. Takagahara.
Weakly correlated exciton pair states in large quantum dots.
Phys. Rev. B **55**, 5113 (1997)
- [Nöt94] R. J. Nötzel, J. Temmyo und T. Tamamura.
Nature **369**, 131 (1994)
- [Oel94] G. Oelgart, M. Proctor, D. Martin, F. Morier-Genaud, F.-K. Reinhart, B. Orschel, L. C. Andreani und H. Rhan.
Experimental and theoretical study of excitonic transitions energies in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells.
Phys. Rev. B **49**, 10456 (1994)
- [Ohn96] B. Ohnesorge, M. Albrecht, J. Oshinowo, A. Forchel und Y. Arakawa.
Rapid carrier relaxation in self-assembled In_{1-x}Ga_{1-x}As quantum dots.
Phys. Rev. B **54**, 11532 (1996)
- [Pet84] P. M. Petroff, R. C. Miller, A. C. Gossard und W. Wiegmann.
Impurity trapping, interface structure and luminescence of GaAs quantum wells grown by molecular beam epitaxy.
App. Phys. Lett. **44**, 217 (1984)
- [Poh84] D. W. Pohl, W. Denk und M. Lanz.
Optical stethoscopy: Image recording with resolution $\lambda/20$.
App. Phys. Lett. **44**, 651 (1984)
- [Ram97] T. R. Ramachandran, R. Heitz, P. Chen und A. Madhukar.
Mass transfer in Stranski-Krastanov growth of InAs on GaAs.
App. Phys. Lett. **70**, 640 (1997)

- [Ray96] Lord Rayleigh.
On Some Electro magnetic phenomena.
Philosoph. Mag. **5(42)**, 167 (1896)
- [Ric97] A. Richter, G. Behme, M. Süptitz, C. Lienau, T. Elsaesser, M. Rammsteiner,
R. Nöetzel und K. H. Ploog.
*Real-Space Transfer and Trapping of Carriers into Single GaAs Quantum Wires
Studied by Near-Field Optical Spectroscopy.*
Phys. Rev. Lett. **79**, 2145 (1997)
- [Ric98] Alexander Richter.
Optische Nahfeldspektroskopie an einzelnen GaAs-Quantendrähten.
Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, Berlin (1998)
- [Rob98] H. D. Robinson, M. G. Müller, B. B. Goldberg und J. L. Merz.
*Local optical spectroscopy of self-assembled quantum dots using a near-field optical
fiber probe to induce a localized strain field.*
App. Phys. Lett. **72**, 2081 (1998)
- [Rob99] L. M. Robinson, H. Rho, J. C. Kim, Howard, E. Jackson, L. M. Smith, S. Lee,
M. Dobrowolska und J. K. Furdyna.
*Quantum Dot Exciton Dynamics through a Nanoaperture: Evidence for Two Con-
fined States.*
Phys. Rev. Lett. **83**, 2797 (1999)
- [Rob00] H. D. Robinson und B. B. Goldberg.
Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots.
Phys. Rev. B **61**, R5086 (2000)
- [Run98a] E. Runge und R. Zimmermann.
*Level repulsion in excitonic spectra of disordered systems and local relaxation ki-
netics.*
Annalen der Physik **7**, 417 (1998)
- [Run98b] E. Runge und R. Zimmermann.
Optical Properties of localized excitons in nanostructures: Theoretical aspects.
Festkörperprobleme/Advances in Solid State Physics **38**, 251 (1998)
- [Run98c] E. Runge und R. Zimmermann.
Spatially resolved spectra and effective mobility edge in narrow quantum wells.
Phys. stat. sol. (b) **206**, 167 (1998)
- [Run02] E. Runge.
Excitons in Semiconductor Nanostructures.
1 Auflage (in: Solid State Physics Series, Academic Press, San Diego, 2002)
- [Sai96] T. Saiki, S. Mononobe, M. Ohtsu, N. Saito und J. Kusano.
*Tailoring a high-transmission fiber probe for photon scanning tunneling microscop-
y.*
App. Phys. Lett. **68**, 2612 (1996)
- [Sai99] T. Saiki und K. Matsuda.
*Near field optical fiber probe optimal for illumination-collection hybrid mode op-
eration.*

- App. Phys. Lett. **74**, 2773 (1999)
- [Sal91] Bahaa E. A. Saleeh und Marvin Carl Teich.
Fundamentals of Photonics.
2 Auflage (John Wiley & Sons, New York, 1991)
- [Sav99] V. Savona und R. Zimmermann.
Time-resolved Rayleigh scattering of excitons: Evidence for level repulsion in a disordered system.
Phys. Rev. B **60**, 4928 (1999)
- [Sav02] V. Savona, E. Runge, R. Zimmermann, F. Intonti, V. Emiliani, Ch. Lienau und T. Elsaesser.
Level Repulsion of Localized Excitons in Disordered Quantum Wells.
phys. stat. sol. (a) **190**, 625 (2002)
- [Sch86] L. Schultheis, A. Honold, J. Kuhl, K. Köhler und C. W. Tu.
Optical dephasing of homogeneously broadened two-dimensional exciton transitions in GaAs quantum wells.
Phys. Rev. B **34**, 9027 (1986)
- [Sch96] Schott.
Optischer Glaskatalog (Mainz, 1996)
- [Sch98] G. Schneider.
Cryo X-ray microscopy with high spatial resolution in amplitude and phase contrast.
Ultramicroscopy **75**, 85 (1998)
- [Sci00] Roper Scientific.
Datenblatt zu Princeton Instruments Spec-10: 100BR.
Technischer Bericht (2000)
- [Sha92] Jagdeep Shah.
Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures.
2. Auflage (Springer, Berlin, 1992)
- [Sha01] W. Sha, T. B. Norris, W. J. Schaff und K. E. Meyer.
Time-Resolved Ballistic Acceleration of Electrons in a GaAs Quantum-Well Structure.
Phys. Rev. B **63**, R161308 (2001)
- [Sha02] J. M. Shacklette und S. T. Cundiff.
Role of excitation-induced shift in the coherent optical response of semiconductors.
Phys. Rev. B **66**, 045309 (2002)
- [She84] Y. R. Shen.
The Principles of Nonlinear Optics.
1. Auflage (John Wiley, New York, 1984)
- [She97] C. Sheppard.
Confocal Laser scanning microscopy.
3. Auflage (Springer, Berlin, 1997)

- [Sno94] D. W. Snoke.
Density dependence of electron scattering at low density.
Phys. Rev. B **50**, 11583 (1994)
- [Sol01] G. S. Solomon, M. Pelton und Y. Yamamoto.
Single-mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity.
Phys. Rev. Lett. **86**, 3903 (2001)
- [Spe91a] D. E. Spence, J. M. Evans, W.E. Sleat und W. Sibbett.
Regeneratively initiated self-mode-locked Ti:sapphire laser.
Opt. Lett. **16**, 1762 (1991)
- [Spe91b] D. E. Spence, P. N. Kean und W. Sibbett.
60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser.
Opt. Lett. **16**, 42 (1991)
- [Spi94] Ch. Spielmann, Peter F. Curley, Thomas Brabec und Ferenc Krausz.
Ultrabroadband Femtosecond Lasers.
IEEE J. Quant. Electr. **30**, 1100 (1994)
- [SR85] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla und D. A. B. Miller.
Theory of transient excitonic optical nonlinearities in semiconductor quantum-well structures.
Phys. Rev. B **32**, 6601 (1985)
- [Stö99] R. Stöckle, C. Fokas, V. Deckert, R. Zenobi, B. Sick, B. Hecht und U. P. Wild.
High-quality near-field optical probes by tube etching.
App. Phys. Lett. **75**, 160 (1999)
- [Sti01] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi und L. J. Sham.
Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots.
Phys. Rev. Lett. **87**, 133603 (2001)
- [Sti02a] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, J. R. Guest, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer und D. Park.
Wavelength modulation spectroscopy of single quantum dots.
App. Phys. Lett. **80**, 1876 (2002)
- [Sti02b] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer und D. Park.
Transient nonlinear spectroscopy of excitons and biexcitons in single quantum dots.
Phys. Rev. B **65**, 205319 (2002)
- [Sto92] G. Stock und W. Domcke.
Detection of ultrafast molecular-excited-state dynamics with time- and frequency-resolved pump-probe spectroscopy.
Phys. Rev. A **45**, 3032 (1992)
- [Str37] J. N. Stranski und L. Krastanov.
Sitzungsberichte d. Akad. d. Wissenschaften in Wien **B. 146**, 797 (1937)

- [Sug95] M. Sugarawa.
Theory of spontaneous-emission lifetime of Wannier excitons in mesoscopic semiconductor quantum disks.
Phys. Rev. B **51**, 10743 (1995)
- [Sut01] D. Suter.
Vorlesung: Physik B2, Optik (Universität Dortmund, 2001)
- [Syn28] E. H. Synge.
A suggested method for extending the microscopic resolution into the ultramicroscopic region.
Phil. Magna **6**, 356 (1928)
- [Tak85] T. Takagahara.
Localization and energy transfer of quasi-two-dimensional excitons in GaAs-AlAs quantum-well heterostructures.
Phys. Rev. B **31**, 6552 (1985)
- [Tak99] T. Takagahara.
Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots.
Phys. Rev. B **60**, 2638 (1999)
- [Tas92] F. Tassone, F. Bassani und L. C. Andreani.
Quantum-well reflectivity and exciton polariton dispersion.
Phys. Rev. B **45**, 6023 (1992)
- [Ter94] B. D. Terris, H. J. Mamin, D. Rugarand, W. R. Studenmund und G. S. Kino.
Near-field optical data storage using a solid immersion lens.
App. Phys. Lett. **65**, 388 (1994)
- [The85] W. R. Theis.
Grundzüge der Quantentheorie.
1. Auflage (Teubner, Stuttgart, 1985)
- [Thi98] J. Thieme, G. Schmahl, D. Rudolph und E. Umbach.
X-ray microscopy and spectroscopy.
3. Auflage (Springer, Berlin, 1998)
- [Thr02] A. Thränhardt, C. Ell, G. Khitrova und H. M. Gibbs.
Relation between dipole moment and radiative lifetime in interface fluctuation quantum dots.
Phys. Rev. B **65**, 035327 (2002)
- [Tod98] Y. Toda, S. Shinomori, K. Suzuki und Y. Arakawa.
Near-field optical spectroscopy of self-assembled quantum dots: NSOM apparatus for measuring the features of single dots.
Solid State electronics **42**, 1083 (1998)
- [Tod00] Y. Toda, T. Sugimoto, M. Nishioka und Y. Arakawa.
Near-field coherent excitation spectroscopy of InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots.
App. Phys. Lett. **76**, 3887 (2000)

- [Tro00] F. Troiani, U. Hohenester und E. Molinari.
Exploiting exciton-exciton interaction in semiconductor quantum dots for quantum-information processing.
Phys. Rev. B **62**, R2263 (2000)
- [Uno02] Th. Unold und Ch. Lienau.
Ultrafast Near-Field Spectroscopy of Correlated Exciton States in Single Quantum Dots (2002).
To be published
- [Val91] F. Vallée und F. Bogani.
Coherent time-resolved investigation of LO-phonon dynamics in GaAs.
Phys. Rev. B **43**, 12049 (1991)
- [Ver00] O. Verzelen, R. Ferreira und G. Bastard.
Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots.
Phys. Rev. B **62**, R4809 (2000)
- [Ver01] O. Verzelen, R. Ferreira und G. Bastard.
Polaron coupling in quantum dot molecules.
Phys. Rev. B **64**, 075315 (2001)
- [Ver02a] O. Verzelen, G. Bastard und R. Ferreira.
Energy relaxation in quantum dots.
Phys. Rev. B **66**, R081308 (2002)
- [Ver02b] O. Verzelen, R. Ferreira und G. Bastard.
Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots.
Phys. Rev. Lett. **88**, 146803 (2002)
- [Vol99] M. Vollmer, H. Giessen, W. Stolz, L. Ghislain und V. Elings.
Ultrafast nonlinear subwavelength solid immersion spectroscopy at $T = 8$ K.
App. Phys. Lett. **74**, 1791 (1999)
- [Wag99] H. P. Wagner, H.-P. Tranitz und R. Schuster.
Formation and phase relaxation of negatively charged excitons in ZnSe single quantum wells.
Phys. Rev. B **60**, 15542 (1999)
- [Wak92] D. R. Wake, H. W. Yoon, J. P. Wolfe und H. Morkoç.
Response of excitonic absorption spectra to photexcited carriers in GaAs quantum wells.
Phys. Rev. B **46**, 13452 (1992)
- [Wan93] Hailin Wang, Kyle Ferrio, Duncan G. Steel, Y.Z. Hu, R. Binder und S. W. Koch.
Transient Nonlinear Optical Response from Excitation Induced Dephasing in GaAs.
Phys. Rev. Lett. **71**, 1261 (1993)
- [Wan94] N. Wang, J. K. Jenkind, V. Chernyak und S. Mukamel.
Exciton confinement and nonlocal nonlinear optical response of organic quantum wells.
Phys. Rev. B **49**, 17079 (1994)

- [Wel85] D. F. Welch, G. W. Wicks und L. F. Eastman.
Luminescence line shape broadening mechanisms in GaAs/AlInAs quantum wells.
App. Phys. Lett. **46**, 991 (1985)
- [Whi93] W. E. White, F. G. Patterson, R. L. Combs, D. F. Price und R. L. Shepherd.
Negative dispersion compensation using pair of prisms.
Opt. Lett. **18**, 1343 (1993)
- [Wu99] Q. Wu, R. D. Grober, D. Gammon und D. S. Katzer.
Imaging Spectroscopy of Two-Dimensional Excitons in a Narrow GaAs/AlGaAs Quantum Well.
Phys. Rev. Lett. **83**, 2652 (1999)
- [Zha02] Hui Zhao, Sven Wachter und Heinz Kalt.
Effect of quantum confinement on exciton-phonon interactions.
Phys. Rev. B **66**, 85337 (2002)
- [Zhe88] X. L. Zheng, D. Heiman, B. Lax und F. A. Chambers.
Reflectance line shapes from GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs quantum well structures.
App. Phys. Lett. **52**, 287 (1988)
- [Zim92] R. Zimmermann.
Phys. Stat. Sol. (b) **173**, 129 (1992)
- [Zim93] R. Zimmermann, E. Runge und F. Grosse.
Proc. ICPS 23 (1993)
- [Zim95] R. Zimmermann.
Excitonic spectra in semiconductor nanostructures.
Jap. Journ. of Appl. Phys. **34** (Sup. 1), 228 (1995)
- [Zim97] R. Zimmermann, F. Grosse und E. Runge.
Excitons in semiconductor nanostructures with disorder.
Pure & Appl. Chem. **69**, 1179 (1997)
- [Zre02] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis M. Bichler und G. Abstreiter.
Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode.
Nature **418**, 612 (2002)

Kapitel 8

Anhang

8.1 Abkürzungen

B	Magnetfeld
E	elektrisches Feld
<i>FWHM</i>	<i>Full Width Half Maximum</i> : Halbwertsbreite
<i>NA</i>	Numerische Apertur ($NA = n \sin \delta$, δ : halber Öffnungswinkel des Objektivs)
R, R_0	Reflexion mit, ohne Anregeimpuls
T, T_0	Transmission mit, ohne Anregeimpuls
T_1	Lebensdauer des Exzitonengrundzustands: $T_2 = 1/\Gamma$
T_2	Dephasierungszeit: $T_2 = 1/\gamma$
T_{EID}	Anregungsinduziertes Dephasierung: Dephasierungszeit
T_R	Relaxationszeit angeregter Ladungsträger
$\Delta R/R_0$	Reflektivitätsänderung
$\Delta T, \Delta R$	Transmissions-, Reflexionsänderung
Δt	Verzögerungszeit zwischen Anrege- und Abtastimpuls
Γ	Rekombinationsrate des Exzitonengrundzustands
α	Absorptionskoeffizient
χ	Oszillatorstärke
ϵ	Dielektrizitätskonstante eines dispersiven Mediums
γ	Dephasierungsrate kohärenter Polarisation
κ	Exzinktionskoeffizient: Imaginärteil des komplexen Brechungsindex $\tilde{n} (\kappa = \text{Im}(\tilde{n}))$
μ_{cv}	Dipolmoment
ω_R	Rabifrequenz
\tilde{n}	komplexer Brechungsindex: $\tilde{n} = n + i\kappa$
f	Besetzungsdichte der unterschiedlichen Zustände
n	Brechungsindex: Realteil des komplexen Brechungsindex \tilde{n} ($n = \text{Re}(\tilde{n})$)
p	mikroskopische Polarisation
COM	Schwerpunktsbewegung
D	Dimension
LO-Phonon	Longitudinal optisches Phonon

MBE	Molekularstrahlepitaxie
MOVPE	Metallorganischer Dampfdesorptionsepitaxie
NSOM	Nahfeldmikroskop
PLE	Photolumineszenz Anregung
PL	Photolumineszenz
P	Leistung
P	makroskopische Polarisierung
QD	Quantenpunkt
QW	Quantenfilm
SPS	short period superlattice
S	Poyntingvektor
c	Lichtgeschwindigkeit
h	Plancksches Wirkungsquantum
γ_{EID}	anregungsinduzierte Dephasierungsrate
γ_0	freie Dephasierungsrate ($\gamma_0 = 1/T_2$)
a_0	Exzitonenbohrradius

8.2 wichtige physikalische Größen

D	Debye	$1D = 3.336 \cdot 10^{-30} Cm$	$ea_B = 2.542D$
ϵ_0	Vakuumpdielektrizitätskonstante	$8.85 \times 10^{-12} \frac{As}{Vm}$	
h	Plancksches Wirkungsquantum	$6.6023 \times 10^{-34} Js$	$\hbar = \frac{h}{2\pi}$
c	Lichtgeschwindigkeit	$2.99 \times 10^8 \text{ m/s}$	
m_0	Elektronenmasse	$9.11 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	
m_e	effektive Elektronenmasse	am Γ -Punkt:	in GaAs: $m_e = 0.067m_0$
m_h	effektive Lochmasse	am Γ -Punkt:	in GaAs: $m_e = 0.34m_0$
M	effektive Exzitonenmasse	am Γ -Punkt:	in GaAs: $M = 0.25m_0$

Tabelle 8.1: In dieser Arbeit verwendete physikalische Größen und Einheiten

Lebenslauf

Tobias Günther

geboren am 03.12.1971 in Ebingen (jetzt Albstadt)

Familienstand: ledig

Staatsangehörigkeit: deutsch

- 1978-82 Besuch der Grundschule in Albstadt
- 1982-1991 Besuch des Gymnasium Ebingen
- 6/1991 **Abitur**
- 10/1991-7/1993 Studium der **Physik** an der Universität Tübingen
- 8/1993- 6/1994 Studium an der USC in Pueblo, Co, USA
- 10/1994-12/1997 Studium der **Physik** an der FU Berlin
- 12/1997 Diplom in Physik:
Thema der Diplomarbeit: „Einfluß von Temperatur auf Morphologie und Magnetismus dünner magnetischer Filme“
- 1/1998-4/1998 **Gastwissenschaftler** der AG Kaindl zur Untersuchung dünner Gd-Filme auf W(110)
- seit 4/1998 **Doktorand** am Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie Berlin

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich bei all denjenigen ganz herzlich bedanken, die zum Gelingen meiner Arbeit beigetragen haben:

Herrn Prof. Dr. T. Elsässer danke ich für die freundliche Aufnahme in seinem Bereich sowie die Möglichkeit auf dem faszinierenden Gebiet der zeitaufgelösten Nahfeldmikroskopie arbeiten zu können.

Besonderen Dank gebührt Herrn Dr. Christoph Lienau für die gute Betreuung und die wertvollen aufschlussreichen Diskussionen und Anmerkungen, die diese Arbeit erst ermöglichten. V. Emiliani danke ich für die Zusammenarbeit bei den Raumtemperaturmessungen an der Quantendrahtprobe.

F. Intonti, Th. Unold und K. Müller für die Zusammenarbeit im Rahmen aller Nahfeldprojekte, für zahlreiche Diskussionen und Tips .

Ganz besonders bedanke ich mich bei Monika Tischer, die durch die Herstellung der Spitzen und deren Montage auf die Spitzenhalterung die Messungen überhaupt erst ermöglichten.

Frau Fischer für die Herstellung der schräg geschnittenen Glasfasern.

R. Nötzel und K. Ploog, S. Eshlaghi und A. Wieck für die Herstellung der Quantendraht- bzw. Mehrfachquantenfilmstruktur.

Hr. Markus Glanemann für die theoretischen Berechnungen, die viel zum Verständnis der Daten beigetragen haben.

Hr. Goleschny, Hr. Schulz und Herrn Scholze, sowie der gesamten Werkstatt, die die benötigten Bauteile für den Neubau und Umbau der Nahfeldmikroskope stets schnell und zuverlässig erstellten.

F. Eickemeyer, R. Kaindl, K. Reimann, M. Wörner, V. Malyarchuk, G. Cassaboïs, J. Tomm, J. Stenger, N. Huse, J. Edler, A. Richter für die zahlreichen Diskussionen und Vorschläge und das freundliche Arbeitsklima.

G. Kordaß und R. Thiel für die nette Atmosphäre und die Hilfe im Büro.

Ein grosser Dank gebührt auch J. Schulz für die Fehlerkorrekturen an dieser Arbeit.

Ganz besonders möchte ich meinen Freunden danken, die mir in dieser von zahlreichen persönlichen Rückschlägen geprägten Zeit, stets zu Hilfe waren und mir mit Rat und Tat beiseite standen.

Zuletzt gebührt ein ganz besonderer Dank meiner Familie, meinem noch verbliebenen Bruder, die trotz der zahlreichen Schicksalsschläge stets ein Hort der Geborgenheit waren, und mir immer die nötige Kraft gaben.

Liste der Publikationen und Konferenzberichte

Während dieser Arbeit entstandene Publikationen und ausgewählte Konferenzberichte:

Publikationen:

1. J. W. Tomm, T. Günther, C. Lienau, A. Gerhardt, J. Donecker: *Near-field photocurrent spectroscopy in diode laser devices*, J. Crystal Growth **210** (2000) 296-302
2. V. Malyarchuk, J. W. Tomm, T. Günther, R. Müller, R. Kunkel, C. Lienau, J. Luft: *Large optical cavity waveguides for high-power diode laser applications*, SPIE Proc. **4287** (2001) 111-7
3. C. Lienau, V. Emiliani, T. Günther, F. Intonti, T. Elsaesser: *Picosecond and femtosecond near-field optical spectroscopy of carrier dynamics in semiconductor nanostructures*, Physica B **272** (1999) 96-100
4. V. Emiliani, T. Günther, F. Intonti, A. Richter, C. Lienau, T. Elsaesser: *Spatially and temporally resolved near-field spectroscopy of single GaAs quantum wires*, J. Phys.: Condens. Matter **11** (1999) 5889-5900
5. T. Guenther, V. Malyarchuk, J. W. Tomm, R. Müller, C. Lienau, J. Luft, *Near-field photocurrent imaging of the optical mode profiles of semiconductor laser diodes*, Appl. Phys. Lett. **78** (2001), 1463-5
6. C. Lienau, V. Emiliani, T. Guenther, F. Intonti, T. Elsaesser, R. Nötzel, K. H. Ploog, *Near-field scanning optical spectroscopy of quasi-one-dimensional semiconductor nanostructures*, Frontiers of Nano-Optoelectronic Systems: Molecular scale engineering and processes; Eds. L. Pavesi and E. Buzaneva; NATO ASI Series (2000), 377-92
7. V. Emiliani, T. Guenther, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel, K. H. Ploog, *Ultrafast near-field pump-probe spectroscopy of quasi-one-dimensional transport in a single quantum wire*, Ultrafast Phenomena XII, T. Elsaesser, S. Mukamel, M.M. Murnane, N.F. Scherer (Eds.), Springer Verlag, Berlin (2000), 256-258
8. V. Emiliani, T. Guenther, C. Lienau, R. Nötzel, K. H. Ploog, *Femtosecond near-field spectroscopy: Carrier relaxation and transport in single quantum wires*, J. Microsc. **202** (2001), 229-240

9. T. Guenther, V. Emiliani, F. Intonti, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel, K. H. Ploog, *Femtosecond near-field spectroscopy of a single GaAs quantum wire*, Appl. Phys. Lett. **75** (1999), 3500-3502
10. C. Lienau, V. Emiliani, T. Guenther, F. Intonti, T. Elsaesser, R. Nötzel, K. H. Ploog, *Near field optical spectroscopy of confined excitons*, Phys. status solidi A **178** (2000), 471-479
11. V. Emiliani, T. Guenther, C. Lienau, *Ultrafast near-field spectroscopy of quasi-one dimensional transport in a single quantum wire*, Phys. Rev. B **61** (2000), R10583-10586
12. T. Elsaesser, V. Emiliani, T. Guenther, F. Intonti, C. Lienau, R. Nötzel, K. Ploog, *Time-resolved near-field optical spectroscopy of single semiconductor quantum wires*, SPIE Proc. **3940** (2000), 206-16
13. T. Guenther, Ch. Lienau, Th. Elsaesser, M. Glanemann, T. Kuhn, S. Eshlaghi, A. Wieck, *Coherent nonlinear optical response of single quantum dots studied by ultrafast near-field spectroscopy*, Phys. Rev. Lett, **89**, 057401 (2002)

Konferenzberichte:

1. *Femtosecond Nearfield Spectroscopy of Single semiconductor Quantum Wires*, T. Guenther, V.Emiliani, F.Intonti, Ch. Lienau, Th.Elsaesser, DPG Frühjahrstagung Münster, März 1999
2. *Femtosecond Nearfield Spectroscopy of Single semiconductor Quantum Wires*, T. Guenther, V.Emiliani, Ch. Lienau, Th.Elsaesser, DPG Frühjahrstagung Regensburg, März 2000
3. *Femtosecond Nearfield Spectroscopy of Single semiconductor Quantum Wires*, T. Guenther, V.Emiliani, Ch. Lienau, Th.Elsaesser, NFO 6 Enschede, NL, September 2000
4. *Femtosecond Nearfield Spectroscopy of Single semiconductor Quantum Dots*, T. Guenther, K. Müller, Ch. Lienau, Th.Elsaesser, M.Glanemann, T. Kuhn, S. Eshlaghi, A. Wieck DPG Frühjahrstagung Regensburg, März 2002
5. *Femtosecond Nearfield Spectroscopy of Single semiconductor Quantum Dots*, T. Günther, Ch. Lienau, Th.Elsaesser, M.Glanemann, T. Kuhn, S. Eshlaghi, A. Wieck QELS: 2002 eingeladener Vortrag , Mai 2002
6. *Femtosecond Nearfield Spectroscopy of Single semiconductor Quantum Dots*, T. Günther, Ch. Lienau, Th.Elsaesser, M.Glanemann, T. Kuhn, S. Eshlaghi, A. Wieck Ultrafast: 2002 eingeladener Vortrag , Mai 2002

Selbständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, die vorliegende Arbeit selbständig ohne fremde Hilfe verfaßt zu haben und nur die angegebene Literatur und Hilfsmittel verwendet zu haben.

Tobias Günther
8. Januar 2003